

# Elektronen-Holographische Tomographie zur 3D-Abbildung von elektrostatischen Potentialen in Nanostrukturen

## DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor rerum naturalium  
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von

**Dipl. Phys. Daniel Wolf**

geboren am 23.05.1977 in Dresden

Institut für Strukturphysik  
Fachrichtung Physik  
Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften  
Technische Universität Dresden  
2010

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Hannes Lichte
2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. Michael Radermacher

Tag der mündlichen Prüfung: 04.02.2011



## Kurzfassung

Die Aufklärung der grundlegenden Struktur-Eigenschaft-Beziehung von Materialien auf der (Sub-)Nanometerskala benötigt eine leistungsfähige Transmissions-elektronenmikroskopie. Dabei spielen insbesondere die durch die Nanostruktur hervorgerufenen intrinsischen elektrischen und magnetischen Feldverteilungen eine entscheidende Rolle. Die Elektronen-Holographische Tomographie (EHT), d.h. die Kombination von off-axis Elektronenholographie (EH) und Elektronentomographie (ET), bietet einen einzigartigen Zugang zu dieser Information, weil sie die quantitative 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale und magnetostatischer Vektorfelder bei einer Auflösung von wenigen (5-10) Nanometern ermöglicht.

Für die Rekonstruktion des 3D-Potentials erfolgt zunächst die Aufzeichnung einer Kippserie von Hologrammen im Elektronenmikroskop. Durch die anschließende Rekonstruktion der Objektwelle aus jedem Hologramm liegt eine Amplituden- und eine Phasenkippsreihe vor. Die Phasenkippsreihe wird schließlich zur tomographischen 3D-Rekonstruktion des elektrostatischen Potentials verwendet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die EHT von einer manuell aufwendigen zu einer weitestgehend automatisierten Methode entwickelt. Die Automatisierung beinhaltet die Entwicklung des ersten Softwarepaketes zur computergestützten Aufzeichnung einer holographischen Kippserie (THOMAS). Verglichen mit rein manueller Vorgehensweise verkürzt sich mit THOMAS die Dauer für die Aufnahme einer holographischen Kippserie, bestehend aus Objekt- und Leerhologrammen, auf weniger als ein Drittel. Mittlerweile beträgt die Aufnahmezeit im Mittel etwa 2-3 Stunden. Auch die holographische Rekonstruktion und zugehörige Operationen zur Entfernung von Artefakten in den Phasenbildern ist durch entsprechende Prozeduren, welche für eine gesamte Kippserie in einem Schritt anwendbar sind, automatisiert.

Zudem ermöglichen erst spezielle selbstentwickelte Ausrichtungsmethoden die exakte Verschiebungskorrektur von Kippserien der hier untersuchten stabförmigen Objekte (Nanodrähte, FIB-präparierte Nadeln). Für die tomographische Rekonstruktion wurde in dieser Arbeit die Simultane Iterative Rekonstruktionstechnik (SIRT) zur W-SIRT weiterentwickelt. In der W-SIRT wird statt einer Einfachen eine Gewichtete Rückprojektion bei jeder Iteration verwendet, was eine bessere Konvergenz der W-SIRT gegenüber der SIRT zur Folge hat.

Wie in anderen ET-Techniken auch, ist in der EHT für die Rekonstruktion des dreidimensionalen Tomogramms meist nur aus Projektionen innerhalb eines begrenzten Winkelbereichs möglich. Dies führt in den Tomogrammen zu einem sogenannten Missing Wedge, welcher neben dem Verlust von Auflösung auch Artefakte verursacht. Daher wird eine Methode vorgestellt, wie sich das Problem des Missing Wedge bei geeigneten Objekten durch Ausnutzung von Symmetrien entschärfen lässt.

Das mittels EHT rekonstruierte 3D-Potential gibt Aufschluss über äußere (Morphologie) und innere Objektstruktur, sowie über das Mittlere Innere Potential (MIP) des Nanoobjektes. Dies wird am Beispiel von epitaktisch gewachsenen Nanodrähten (nanowires, NWs) aus GaAs und AlGaAs demonstriert.

Anhand entsprechender Isopotentialflächen im 3D-Potential lässt sich die 3D-Morphologie studieren: Die Facetten an der Oberfläche der NWs erlauben Rückschlüsse über die dreidimensionale kristalline Struktur. Des Weiteren zeigt das rekonstruierte 3D-Potential eines AlGaAs/GaAs-Nanodrahtes deutlich dessen Kern/Schale-Struktur, da sich GaAs-Kern und AlGaAs-Schale bezüglich des MIP um  $0.61\text{ V}$  unterscheiden.

Im Falle dotierter Halbleiterstrukturen mit  $pn$ -Übergang (z.B. Transistoren) bietet die mittels EHT rekonstruierte Potentialverteilung auch Zugang zur Diffusionsspannung am  $pn$ -Übergang. Diese Größe kann ohne Projektions- und Oberflächeneffekte (dead layer) im Innern der Probe gemessen und in 3D analysiert werden. Für drei nadelförmig mittels FIB präparierte Proben (Nadeln) werden die Diffusionsspannungen  $\Delta V_{pn}$  bestimmt: Die Messungen ergeben für zwei Silizium-Nadeln jeweils  $\Delta V_{pn} = 1.0\text{ V}$  und  $\Delta V_{pn} = 0.5\text{ V}$ , sowie für eine Germanium-Nadel  $\Delta V_{pn} = 0.4\text{ V}$ .

Im Falle der GaAs- und AlGaAs-Nanodrähte reduziert der Missing Wedge die Genauigkeit der mittels EHT gewonnenen 3D-Potentiale merklich, insbesondere bezüglich der MIP-Bestimmung. Dagegen stimmen die Potentiale der Germanium- und Silizium-Nadeln exzellent mit theoretischen Werten überein, wenn der Missing Wedge durch Ausnutzung der Objektsymmetrie behoben wird.



## Abstract

Revealing the essential structure-property relation of materials on a (sub-)nanometer scale requires a powerful Transmission Electron Microscopy (TEM). In this context, the intrinsic electrostatic and magnetic fields, which are related to the materials nano structure, play a crucial role. Electron-holographic tomography (EHT), that is, the combination of off-axis electron holography (EH) with electron tomography (ET), provides an unique access to this information, because it allows the quantitative 3D mapping of electrostatic potentials and magnetostatic vector fields with a resolution of a few (5 – 10) nanometers.

The reconstruction of the 3D potential starts with the acquisition of a hologram tilt series in the electron microscope. The subsequent reconstruction of the electron object wave from each hologram yields a tilt series in both amplitude and phase images. Finally, the phase tilt series is used for the tomographic reconstruction of the 3D potential.

In this work, EHT has been developed from a manual and time-consuming approach to a widely automated method. The automation includes the development of the first software package for computer-controlled acquisition of holographic tilt series (THOMAS), a prerequisite for efficient data collection. Using THOMAS, the acquisition time for a holographic tilt series, consisting of object and reference holograms, is reduced by more than a factor of three, compared to the previous, completely manual approaches. Meanwhile, the acquisition takes 2-3 hours on average. In addition, the holographic reconstruction and corresponding methods for removal of artefacts in the phase images have been automated, now including one-step procedures for complete tilt series.

Furthermore, specific self-developed alignment routines facilitate the precise correction of displacements within the tilt series of the rod-shaped samples, which are investigated here (e.g. nanowires, FIB needles). For tomographic reconstruction, a W-SIRT algorithm based on a standard simultaneous iterative reconstruction technique (SIRT) has been developed. Within the W-SIRT, a weighted back-projection instead of a simple back-projection is used. This yields a better convergence of the W-SIRT compared to the SIRT.

In most cases in EHT (likewise in other ET techniques), the reconstruction of the three-dimensional tomogram is only feasible from projections covering a limited tilt range. This leads to a so-called missing wedge in the tomogram, which causes not only a lower resolution but also artefacts. Therefore, a method is presented, how to solve the missing wedge problem for suitable objects by exploiting symmetries.

The 3D potential offers the outer (morphology) and inner structure, as well as the mean inner potential (MIP) of the nano object. This is shown by means of EHT on epitaxially grown nanowires (NWs) of GaAs and AlGaAs. The 3D morphology is studied using the corresponding iso-surfaces of the 3D potential: The facets on the nanowires surface allow conclusions about the crystalline structure. Moreover, the reconstructed 3D potential of a AlGaAs/GaAs NW clearly shows its core/shell structure due to the MIP difference between GaAs and AlGaAs of 0.61 V.

In case of doped semiconductor structures with *pn*-junctions (e.g. transistors) the

potential distribution, reconstructed by EHT, also provides access to the built-in voltage across the  $pn$ -junction. The built-in voltage  $\Delta V_{pn}$  can be analyzed in 3D and measured without projection and surface effects (e.g. dead layers) within the sample. The measurements of  $\Delta V_{pn}$  in three needle-shaped specimens, prepared by FIB, yield for two silicon needles 1.0 V and 0.5 V, and for a germanium needle 0.4 V.

In case of the GaAs and AlGaAs nanowires the missing wedge reduces the accuracy of the reconstructed 3D potentials significantly, in particular in terms of MIP determination. However, the potentials of the silicon and germanium needles are in excellent agreement with theoretical values, when the object symmetry is exploited to fill-up the missing wedge.

# Symbole, Abkürzungen und Begriffe

## Symbole

$\mathbf{r} = (x, y, z)$	Vektor im dreidimensionalen Ortsraum (körperfestes Koordinatensystem)
$\hat{\mathbf{r}} = (x, y)$	Vektor im zweidimensionalen Ortsraum (Koordinatensystem der Objektebene)
$\mathbf{g} = (g_x, g_y, g_z)$	Vektor im dreidimensionalen Fourierraum (körperfestes Koordinatensystem)
$\hat{\mathbf{g}} = (g_x, g_y)$	Vektor im zweidimensionalen Fourierraum (Koordinatensystem der Objektebene)
$\hat{x}, y, \alpha$	Koordinaten des Radonraums, $\hat{x} \perp$ Kippachse, $y \parallel$ Kippachse, $\alpha$ Kippwinkel

## Abkürzungen

OR, FR	Ortsraum, Fourierraum
TEM	Transmissionselektronenmikroskop(ie)
BFTEM	Hellfeld ( <u>B</u> right- <u>F</u> ield)-Abbildungsmodus im TEM
HAADF-STEM	Nutzung nur der in hohe Raumwinkel gestreuten Elektronen ( <u>H</u> igh- <u>A</u> ngle- <u>A</u> nnular <u>D</u> ark- <u>F</u> ield) für den Raster ( <u>S</u> canning)-Abbildungsmodus im TEM
EH	Elektronenholographie
ET	Elektronentomographie
EHT	Elektronen-Holographische Tomographie
FIB	Gerät zur Probenpräparation unter Benutzung eines Fokussierten Ionenstrahls ( <u>F</u> ocused <u>I</u> on <u>B</u> eam)
DM	Bildverarbeitungssoftware DigitalMicrograph(TM) der Fa. Gatan, Pleasanton, USA
SNR	Signal-zu-Rausch Verhältnis ( <u>S</u> ignal-to- <u>N</u> oise <u>R</u> atio)
MIP	Mittleres Inneres Potential ( <u>M</u> ean <u>I</u> nnner <u>P</u> otential)

## Begriffe

Voxel	Dreidimensionales Bildelement ("Pixel")
Projektion	Je nach Kontext entweder der Prozess oder die projizierte Verteilung
Kippserie	Serie von 2D-Projektionen ein und desselben Objektes, die durch Projektion in verschiedene Richtungen erzeugt wurden.
Sinogramm	2D-Schnitt ( $\hat{x}, \alpha$ -Ebene) durch die Kippserie senkrecht zur Kippachse, oder diskretisierte Form der zweidimensionalen Radontransformierten.
Missing Wedge	Fehlende Information im Tomogramm bei Rekonstruktion aus einem begrenzten Winkelbereich, siehe Abschnitt 4.3.4 auf Seite 60



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2. Grundlagen der TEM</b>	<b>9</b>
2.1. Elastische Elektron-Objekt-Wechselwirkung . . . . .	10
2.1.1. 3D-Potentialverteilung im Festkörper und Mittleres Inneres Potential (MIP) . . . . .	10
2.1.2. Elektrische Phasenschiebung . . . . .	12
2.1.3. Magnetische Phasenschiebung . . . . .	13
2.1.4. Amplitudenkontrast . . . . .	14
2.2. Abbildungstheorie . . . . .	15
2.2.1. Abbildung durch ideale Linse . . . . .	16
2.2.2. Abbildung durch fehlerbehaftete Linse . . . . .	17
2.2.3. Partiiell kohärente Abbildung durch fehlerbehaftete Linse . . .	18
2.2.4. Abbildung schwacher Objekte . . . . .	20
2.3. Zusammenfassung . . . . .	23
<b>3. Off-axis Elektronenholographie</b>	<b>25</b>
3.1. Holographisches Prinzip . . . . .	25
3.2. Aufzeichnung des Elektronenhogramms . . . . .	26
3.3. Rekonstruktion der Bildwelle . . . . .	29
3.4. Einfluss der Aberrationen . . . . .	30
3.5. Stochastische Phasenschwankung . . . . .	33
3.6. Stochastische Potentialschwankung und optimale Dicke für 2D-Abbildungen von Potentialen . . . . .	34
3.7. Phase Unwrapping . . . . .	36
3.7.1. Eindimensionales Phase Unwrapping . . . . .	37
3.7.2. Goldsteins “Branch-Cut Algorithm” . . . . .	38
3.7.3. Flynns “(Weighted) Minimum Discontinuity Approach”: (W)MDA . . . . .	40
3.7.4. Anwendungsbeispiel . . . . .	42
3.8. Zusammenfassung . . . . .	43
<b>4. Elektronentomographie</b>	<b>45</b>
4.1. Ein-Achsen-Tomographie . . . . .	47
4.2. Projektion . . . . .	47
4.2.1. Die Radontransformation . . . . .	48
4.2.2. Das Projektions-Schnitt-Theorem . . . . .	49

4.2.3.	TEM Abbildungsmodi und Projektionsbedingung für Tomographie . . . . .	51
4.3.	Rekonstruktion des Tomogramms . . . . .	53
4.3.1.	Gewichtete Rückprojektion . . . . .	54
4.3.2.	Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (SIRT) . . . . .	56
4.3.3.	Tomographische Auflösung . . . . .	59
4.3.4.	Missing Wedge . . . . .	60
4.4.	Automatisierte Elektronentomographie . . . . .	63
4.5.	Ausrichtung der Kippserie . . . . .	66
4.5.1.	Ausrichtung mittels Kreuzkorrelation . . . . .	66
4.5.2.	Ausrichtung anhand von Bezugspunkten . . . . .	68
4.5.3.	Ausrichtung ohne Bezugspunkte . . . . .	68
4.6.	3D-Visualisierung . . . . .	69
4.7.	Rauschfilterung . . . . .	70
4.8.	Zusammenfassung . . . . .	71
<b>5.</b>	<b>Holographische Tomographie</b>	<b>73</b>
5.1.	Vorarbeiten . . . . .	75
5.2.	Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie . . . . .	75
5.2.1.	Charakteristik des TEM Goniometers . . . . .	76
5.2.2.	Kalibrierung . . . . .	77
5.2.3.	Bestimmung des Euzentrischen Punktes und z-Korrektur in die Euzentrische Höhe . . . . .	78
5.2.4.	Optimale Position des Leerhologramms . . . . .	80
5.2.5.	Computergestützte Aufzeichnung . . . . .	82
5.2.6.	THOMAS . . . . .	85
5.2.7.	Zusammenfassung . . . . .	90
5.3.	Holographische Rekonstruktion . . . . .	90
5.3.1.	Beseitigung von Artefakten in Elektronenhologrammen . . . . .	91
5.3.2.	Rekonstruktion mit Sinc-Filter . . . . .	96
5.3.3.	Stabilität des Phasen-Offsets . . . . .	99
5.3.4.	Interaktives Unwrapping einer Phasenkippsreihe . . . . .	100
5.4.	Ausrichtung der Phasen-Kippserie . . . . .	103
5.4.1.	Manuelle Ausrichtung mithilfe von Bezugslinien . . . . .	103
5.4.2.	Manuelle Ausrichtung mithilfe der Schnittebenen . . . . .	104
5.4.3.	Bestimmung der Kippachse . . . . .	105
5.4.4.	Identifizierung dynamischer Phasenschiebungen . . . . .	107
5.5.	Tomographische Rekonstruktion mittels W-SIRT . . . . .	108
5.5.1.	W-SIRT - Implementierung . . . . .	109
5.5.2.	Gewichtungsfiler . . . . .	110
5.5.3.	Konvergenz . . . . .	111
5.5.4.	z-Auflösung bei Missing Wedge . . . . .	113
5.5.5.	Artefakte bei Missing Wedge . . . . .	114
5.5.6.	Konvergenz bei Missing Wedge . . . . .	114

5.5.7. Lineare Korrektur bei Missing Wedge . . . . .	116
5.5.8. Ausnutzung der Objektsymmetrie bei Missing Wedge . . . . .	118
5.5.9. Einfluss von Rauschen . . . . .	119
5.5.10. Einfluss dynamischer Effekte . . . . .	122
5.5.11. Zusammenfassung . . . . .	123
<b>6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale</b>	<b>127</b>
6.1. Experimentelle Details . . . . .	127
6.2. Latexkugel . . . . .	131
6.3. Dotierte Halbleiter . . . . .	133
6.3.1. Nadel-Präparation mittels FIB . . . . .	135
6.3.2. Dotierte Silizium-Nadeln . . . . .	135
6.3.3. n-Dotierte Germanium-Nadel . . . . .	138
6.3.4. Untersuchung der Diffusionsspannung . . . . .	140
6.4. Halbleiter-Nanodrähte . . . . .	140
6.4.1. GaAs-Nanodraht . . . . .	142
6.4.2. GaAs/AlGaAs-Nanodraht . . . . .	142
6.4.3. Bestimmung der Mittleren Inneren Potentiale . . . . .	144
<b>7. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>149</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>157</b>
A.1. Näherung der Klein-Gordon Gleichung . . . . .	157
A.2. Herleitung der Phase-Grating Approximation . . . . .	158
A.3. Elongationsfaktor . . . . .	159
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>161</b>





# 1. Einleitung

In den letzten zwei Jahrzehnten wurde die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) revolutioniert. Dies war nicht nur durch die enormen instrumentellen Fortschritte, wie z.B. Feldemissions-Elektronenquellen, Monochromatoren, Bildfehlerkorrektoren, Energiefilter oder digitale CCD-Kameras möglich, sondern auch durch die Entwicklung neuer Methoden, Algorithmen und entsprechender Softwareprogramme, die die Vorteile leistungsfähiger Rechentechnik ausnutzen, um moderne Elektronenmikroskope zu steuern bzw. die aufgezeichneten Daten quantitativ auszuwerten. Zwei Techniken, die in besonderem Maße von dieser "Revolution" profitiert haben, sind die off-axis Elektronenholographie (EH) und die Elektronentomographie (ET). Bei beiden Methoden wird die gewünschte Information zunächst indirekt und relativ aufwendig im TEM aufgezeichnet und anschließend im Computer rekonstruiert.

Die ET fand sehr schnell Einzug in den Materialwissenschaften und der Strukturbilogie, weil sie die dreidimensionale (3D) Morphologie und gegebenenfalls auch die chemische Komposition von anorganischen oder organischen Nanostrukturen zu studieren gestattet. Auch die EH ist für die Materialwissenschaften von großem Interesse, da sie einen einzigartigen Zugang zu den elektrischen und magnetischen Eigenschaften von Materialien im Nanometerbereich bietet.

Die Abbildung im TEM basiert auf der Wechselwirkung (WW) zwischen hochenergetischen Elektronen und dem durchstrahlten Objekt. Berücksichtigt man dabei nur die elastische WW, so wirkt sich diese aufgrund der Welleneigenschaften des Elektrons als Amplituden- und Phasenmodulation der Objektaustrittswelle aus.

Bei konventioneller Abbildung wird nur das Amplitudenquadrat aufgezeichnet, die Phase geht verloren. Gerade aber die zweidimensionale Objektphase steht im direkten Zusammenhang mit den intrinsischen elektrostatischen Potentialen und magnetischen Feldern des Objektes, und ist in guter Näherung proportional zum (zweidimensionalen) projizierten 3D-Potential<sup>1</sup>. Folglich ist es von großem Vorteil, dass mittels EH die gesamte Objektaustrittswelle, und insbesondere die Objektphase rekonstruiert werden kann. Bei bekannter Objektdicke lässt sich über die Objektphase eine in Projektionsrichtung  $z$  gemittelte zweidimensionale Potentialverteilung bestimmen, die Potentialmodulation entlang der Durchstrahlungsrichtung  $z$  ist jedoch verloren. Erst die Verbindung von

---

<sup>1</sup>Bei ferromagnetischen Objekten ist die Phase auch proportional zur projizierten, in Projektionsrichtung zeigenden Komponente des magnetischen Vektorpotentials.

## 1. Einleitung

Elektronenholographie und Elektronentomographie zur Elektronen-Holographischen Tomographie (EHT) macht schließlich die Rekonstruktion der gesamten dreidimensionalen Potentialverteilung möglich.

Die holographisch rekonstruierte Phase erfüllt die für die Tomographie wichtige Projektionsbedingung (Projektionstheorem), und ist diesbezüglich den anderen im TEM aufgezeichneten Signalen (STEM, BFTEM, EFTEM, DFTEM) mindestens ebenbürtig. Daher erstaunt die vergleichsweise seltene Anwendung der EHT. Der Hauptgrund liegt vermutlich in der, mangels vorhandener Prozeduren zur computergestützten Automatisierung, manuellen Ausführung der EHT. Die manuelle Vorgehensweise liefert aber nur bedingt reproduzierbare und fehlerfreie Ergebnisse und ist daher zur standardmäßigen Anwendung bzw. für die Lösung schwieriger wissenschaftlicher Fragestellungen nicht geeignet.

Somit lag der Schwerpunkt dieser Arbeit zunächst darin, die einzelnen Abläufe der EHT während der

- Aufzeichnung einer holographischen Kippserie,
- holographischen Rekonstruktion,
- Ausrichtung einer Kippserie (Verschiebungskorrektur der Einzelprojektionen) und
- tomographischen Rekonstruktion der 3D-Objektstruktur

in hohem Maße durch geeignete Prozeduren und Algorithmen zu automatisieren. Erst die weitestgehende Automatisierung bildet die Grundlage dafür, die Grenzen (z.B. laterale Auflösung, Signalauflösung, Genauigkeit, Artefakte) systematisch zu untersuchen, und so die EHT zu einer effizienten und quantitativen Methode für die Rekonstruktion dreidimensionaler Potentialverteilungen zu entwickeln.

Der zweite Schwerpunkt dieser Arbeit ist die quantitative Auswertung der rekonstruierten 3D-Potentiale von verschiedenen Nanostrukturen. Das 3D-Potential gibt direkt Aufschluss über Gestalt (3D-Morphologie) und Mittleres Inneres Potential (MIP) des untersuchten Objektes. Darüberhinaus kann bei heterogenen Strukturen (z.B. Kern/Schale-Strukturen) die dreidimensionale chemische Zusammensetzung infolge der MIP-Unterschiede zwischen den einzelnen Komponenten bestimmt werden. Bei dotierten Halbleiterstrukturen (z.B. in Transistoren) kann im rekonstruierten 3D-Potential der Verlauf der Diffusionsspannung am  $pn$ -Übergang in 3D analysiert werden.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert:

In Kapitel 2 werden die Grundlagen der Abbildung in einem Transmissionselektronenmikroskop diskutiert. Dabei liegt das Hauptaugenmerk auf der mathematischen Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Elektronenwelle und Objektpotential, und der Abbildung der objektmodulierten Elektronenwelle (Objektaustrittswelle) durch die Objektivlinse.

Das dritte Kapitel widmet sich der off-axis Elektronenholographie. Darin werden u.a. Grundprinzip, Aufnahme des Elektronenhogramms und Rekonstruktion der komplexen Bildwelle näher erläutert. Ferner wird das Problem des sogenannten Phase-Unwrappings etwas ausführlicher behandelt. Das Unwrapping der Phase der Bildwelle ist für die EHT von großer Bedeutung, weil dadurch die Proportionalität zwischen Phase und projizierten Potential wiederhergestellt wird.

Das Kapitel 4 befasst sich mit der Elektronentomographie. Neben den theoretischen Grundlagen (z.B. Projektions-Schnitt-Theorem, 3D-Rekonstruktionsmethoden) werden auch praktische Aspekte wie die automatisierte Aufzeichnung einer Kippserie im TEM und die Ausrichtung der Kippserie im Computer diskutiert.

Im fünften Kapitel wird die Holographische Tomographie vorgestellt. Dieses umfangreichste Kapitel dieser Arbeit beschreibt die erzielten Resultate bei der methodischen Entwicklung der EHT. Hervorzuheben sind hier die Entwicklung des ersten Softwarepaketes für die (halb-)automatisierte holographische Aufzeichnung einer Kippserie (THOMAS) und die Gewichtete (Weighted) Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik, kurz W-SIRT, eine Weiterentwicklung zur konventionellen SIRT. Zudem wurde der holographische Rekonstruktionsprozess bzgl. der Reduzierung von Artefakten in den Phasenbildern und der Automatisierung bei Anwendung auf Kippserien optimiert. Schließlich wurden das Unwrapping und die Ausrichtung der Phasenkippsreihe durch selbstentwickelte Software-Tools verbessert.

Mit der Entwicklung der Holographischen Tomographie und deren (teil-)automatisierten Methoden war die Voraussetzung gegeben, dass die elektrostatischen Potentiale einer Reihe von Nanostrukturen in 3D rekonstruiert und analysiert werden konnten. Einige Beispiele dafür werden in Kapitel 6 präsentiert. Dazu gehören mittels FIB-Geräten präparierte Nadeln und epitaktisch gewachsene Nanodrähte aus den Halbleitermaterialien Silizium, Germanium, Galium-Arsenid, Aluminium-Galium-Arsenid, welche entweder dotiert oder undotiert vorlagen. Die 3D-Potentiale dieser Nanostrukturen wurden im Sinne des oben erläuterten zweiten Schwerpunktes quantitativ ausgewertet.

## *1. Einleitung*

## 2. Grundlagen der TEM

Seit der Erfindung des ersten Elektronenmikroskops vor 80 Jahren durch Ruska (1930) hat die Elektronenmikroskopie eine rasante technische Entwicklung genommen. In der heutigen Zeit erlauben moderne Transmissionselektronenmikroskope (TEMs), mit deren Hilfe hoch-energetische Elektronen<sup>1</sup> wenige  $nm$  dünne Proben durchstrahlen, den Blick bis in die atomaren Details der Materie. Dies ist sowohl mit konvergenter Beleuchtung im Rastermodus (STEM) als auch mit paralleler Beleuchtung im Hellfeldmodus (BFTEM) möglich. Darüber hinaus bietet das TEM die Möglichkeit, mithilfe bestimmter Filter (z.B. Energiefilter) oder Detektoren charakteristische Signale aufzuzeichnen (z.B. EFTEM), um damit die verschiedensten Aspekte der elektromagnetischen Wechselwirkung zwischen Materie und Elektron zu studieren. Für eine detaillierte Einführung in das umfassende Gebiet der Elektronenmikroskopie sei bspw. auf die Lehrbücher von Reimer (1984) sowie Williams und Carter (1996) verwiesen.

Dieses Kapitel widmet sich der grundlegenden Beschreibung der wesentlichen Prozesse, die bei der Abbildung im TEM stattfinden.

Der erste Teil des Kapitels (Abschn. 2.1) behandelt die Wechselwirkung (WW) des Elektrons mit dem zu untersuchenden Objekt. Berücksichtigt man dabei nur die elastische WW, so wirkt sich diese wegen der Welleneigenschaften des Elektrons als Amplituden- und Phasenmodulation in der Objektaustrittswelle aus. In Hochauflösung (ca.  $1\text{\AA}$ ) tragen hauptsächlich nur die Atompotentiale nahe des Kerns zur Objektwellenmodulation bei. Dabei durchstrahlt man kristalline Objekte entlang niedrig indizierter Zonenachsen. Dagegen moduliert in mittlerer Auflösung (ca.  $(5 - 10) nm$ ) das über die ganze Einheitszelle gemittelte Potential (Mittleres Inneres Potential, MIP) die Objektwelle, welches auch von der chemischen Bindung abhängt. Doch auch Potentiale, die von der Verteilung freier Ladungsträger herrühren (z.B. Diffusionspotential an  $pn$ -Übergängen in dotierten Halbleitern) wirken sich auf die Objektwelle aus. Dabei durchstrahlt man amorphe Objekte oder Kristalle außerhalb der Zonenachsen.

Vor allem die Phasenmodulation lässt sich unter bestimmten Bedingungen und Annahmen in eine einfache Beziehung zur elektrostatischen dreidimensionalen Potentialverteilung bringen. Dies wird für die 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale in dieser Arbeit ausgenutzt. Zudem tragen im Falle magnetischer Objekte auch deren magnetische Felder zur Phasenmodulation bei.

Doch auch die Amplitudenmodulation liefert gewisse Informationen über das Objekt, da der Kontrast in der Amplitudenverteilung (Amplitudenkontrast) Aufschluss über die Dichte der Streuzentren (Atome) gibt.

---

<sup>1</sup>Die Elektronen werden typischerweise auf  $200 keV$  bzw.  $300 keV$  beschleunigt.

Im zweiten Teil dieses Kapitels steht die wellenoptische Beschreibung der Propagation der Elektronenwelle im TEM (Abschn. 2.2) im Vordergrund. Dabei spielen insbesondere die aberrationsbehaftete Objektlinse und die partielle Kohärenz der Elektronenquelle eine wesentliche Rolle.

## 2.1. Elastische Elektron-Objekt-Wechselwirkung

### 2.1.1. 3D-Potentialverteilung im Festkörper und Mittleres Inneres Potential (MIP)

Die dreidimensionale Potentialverteilung  $V(\mathbf{r}) = V(x, y, z)$  im Festkörper (Objektpotential) ist die wesentliche Eigenschaft, die zur Modulation der Elektronenwelle führt. Das Objektpotential ist über die Poisson-Gleichung mit der Ladungsdichte  $\rho(\mathbf{r})$  verknüpft. Letztere ergibt sich wiederum aus der dreidimensionalen Anordnung der stark lokalisierten, positiv geladenen Atomrümpfe und der (weniger lokalisierten) negativ geladenen Elektronen. Die starke Lokalisierung der Atomrümpfe führt jedoch zu Singularitäten<sup>2</sup> im Potential, im einfachsten Fall beschrieben durch das Wentzel-Potential [Wentzel (1926)]

$$V(r) = \frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(-\frac{r}{b}\right). \quad (2.1)$$

Darin ist  $Z$  die Kernladungszahl,  $e$  die Elementarladung,  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante,  $r$  der Kernabstand und  $b$  die Abschirmlänge der Elektronenschale. Exaktere Atompotentiale für die Beschreibung der Elektronenstreuung liefern Methoden zur Berechnung der Ladungsdichte, wie Hartree-Fock (HF) [Ibers (1958); Doyle und Turner (1968)] oder Thomas-Fermi-Dirac (TFD) [Ibers (1958)]. Die daraus resultierenden Potentiale wurden auf verschiedene Weise parametrisiert, z.B. Doyle und Turner (1968); Weickenmeier (1991); Kirkland (1998), und werden heutzutage standardmäßig bei der Streusimulation von hochaufgelösten TEM-Abbildungen (entlang niedrig indizierter Zonenachsen) benutzt. Insbesondere die parametrisierten Potentiale von Weickenmeier (1991) liefern eine gute Beschreibung für die elastische Streuung der Elektronen im TEM.

Allerdings zeigt sich in mittlerer Auflösung, dass die parametrisierten Atompotentiale zur Beschreibung der holographisch rekonstruierten Phasenverteilungen nicht mehr ausreichen. Infolge der begrenzten Auflösung enthält jeder Bildpunkt der Phase die Information des gemittelten Potentials. Die Mittelung erfolgt dabei über das Volumen  $\Omega$ , welches der Fläche des Auflösungsscheibchens mal der Objektdicke entspricht. In der Literatur wird dies als Gemitteltes Inneres Potential (Averaged Electrostatic Potential, AEP) bezeichnet [Bethe, 1928; Lubk et al., 2010]. Im Allgemeinen ist das AEP ortsabhängig. Wird dagegen der Fall eines unendlich ausgedehnten Kristalls betrachtet und die Mittelung über das

---

<sup>2</sup>Die Ausdehnung des Atomkerns kann man in diesem Zusammenhang als Singularität bezeichnen.

Volumen der Einheitszelle  $\Omega_{uc}$  durchgeführt, so wird das AEP ortsunabhängig. Der entsprechende konstante Wert wird Mittleres Inneres Potential (MIP)

$$V_0 = \frac{1}{\Omega_{uc}} \int_{uc} V(\mathbf{r}) d^3r \quad (2.2)$$

bezeichnet. Das MIP entspricht der nullten Fourierkomponente  $V_0$  der Fouriertransformierten des Potentials

$$V_{\mathbf{g}} = \frac{1}{\Omega_{uc}} \int_{uc} V(\mathbf{r}) \exp(-2\pi\mathbf{g}\mathbf{r}) d^3r. \quad (2.3)$$

Das MIP kann näherungsweise durch Summation der Beiträge  $V_0^j$  der in der Elementarzelle vorhandenen Atome des Elementes  $j$  mit dem Ausdruck

$$V_0 = \sum_j n_j V_0^j, \quad (2.4)$$

berechnet werden. Darin bedeuten  $n_j$  die Besetzungszahl der entsprechenden Atome in der Elementarzelle. Die Beiträge  $V_0^j$  werden aus den parametrisierten Atompotentialen und Gl. (2.2) bestimmt. Dabei wird jedoch angenommen, dass der kristalline Festkörper aus isolierten sphärischen Atomen besteht. Tatsächlich werden aber die Elektronen in der chemischen Bindung umverteilt, was zur Änderung der Ladungsverteilung und letztlich des Potentials führt. Diese zwar schwachen, aber über die gesamte Elementarzelle ausgebreiteten Änderungen machen sich insbesondere im MIP bemerkbar. Somit ist das MIP sehr sensitiv auf die Bindungsverhältnisse zwischen den Valenzelektronen der jeweiligen Atome in der Elementarzelle [O’Keeffe und Spence, 1994]. Mithilfe von Methoden der Dichte-Funktional-Theorie (DFT) [Kim et al. (1998); Kruse et al. (2006); Schowalter et al. (2006)] ist es möglich, die Umverteilung der Elektronen bei der Berechnung des MIP zu berücksichtigen. In der Tat stimmen die damit berechneten Werte mit den experimentellen Werten bedeutend besser überein als die durch Gl. 2.4 erhaltenen MIP-Werte.

Es lassen sich auch eine Reihe von weiteren Effekten in DFT-Rechnungen einbinden, wie

- begrenzte Ausdehnung der Festkörper (crystal slabs) [Kim et al. (1998)],
- Oberflächeneffekte bei Terminierung mit unterschiedlicher Kristallorientierung [Kim et al. (1998)],
- Ladungs- bzw. Potentialmodulationen in komplexeren Systemen (z.B. in  $\text{In}_2\text{O}_3(\text{ZnO})_m$  [Röder et al. (2010)]) und
- Potentiale an ferro-elektrischen Domänengrenzen [Lubk (2010)].

All die hier aufgezählten Einflüsse sind zwar gegenüber dem Absolutwert des MIP relativ klein. Sie können aber von Fall zu Fall mehr oder weniger signifikante zusätzliche Modulationen in der 3D-Potentialstruktur verursachen. Darüber hinaus zeigen sich speziell bei Halbleitern durch gezieltes Dotieren mit Fremdatomen

weitere Variationen im 3D-Potential (Diffusionspotential). Die 3D-Abbildung solcher Potentiale ist ein Schwerpunkt dieser Arbeit (s. Abschnitt 6.3).

### 2.1.2. Elektrische Phasenschiebung

Die Wechselwirkung zwischen hochenergetischen Elektronen und Objekt kann als Modulation der dreidimensionalen Elektronenwelle  $\psi(\mathbf{r})$  mithilfe der genäherten stationären Klein-Gordon Gleichung

$$\left[ \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2\gamma m_0} + V(\mathbf{r}) - E^* \right] \psi(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.5)$$

beschrieben werden. Darin steht  $\hat{\mathbf{p}}$  für den Impulsoperator,  $m_0$  für die Ruhemasse des Elektrons,  $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$  für den relativistischen Faktor, gegeben durch Elektronen- und Lichtgeschwindigkeit  $v$  und  $c$ ,  $E^*$  für die relativistische kinetische Energie nach Gl. (A.5), und  $V(\mathbf{r})$  für das Objektpotential. Die Gleichung hat eine der Schrödinger-Gleichung ähnliche Form, nur mit den der relativistischen Behandlung geschuldeten Modifikationen. Da eine analytische Lösung zur Berechnung der Wellenfunktion  $\psi$  für allgemeine Festkörperpotentiale i. d. R. nicht vorliegt, wird die Differentialgleichung 2. Ordnung ( $\hat{\mathbf{p}}^2 = -\hbar^2 \Delta$ ) numerisch, mittels Streusimulationen integriert. Dazu werden üblicherweise Multislice-Verfahren [Cowley und Moodie (1957); Kirkland (1998)], Blochwellen-Verfahren [Lamla (1938); Howie und Whelan (1961); Kirkland (1998)] oder auch direkte numerische Verfahren [Lubk (2010)] unter Ausnutzung der Vorwärtstreunäherung angewendet. Die Theorie zur Beschreibung und Lösung dieses Streuproblems wird unter dem Begriff *dynamische Theorie* zusammengefasst, da darin, im Gegensatz zur *kinematischen Theorie* (Erste Bornsche Näherung), die Auswirkungen von bspw. Mehrfachstreuung (dynamischen Effekten) auf die Wellenfunktion richtig beschrieben werden. Aus der dynamischen Theorie geht hervor, dass es schwierig ist, generelle Aussagen über die Beziehung zwischen Objektpotential und Amplituden-, Phasenmodulation der Welle abzuleiten.

Dennoch kann mithilfe der Phase-Grating Approximation (PGA, Herleitung s. A.2), die Beziehung zwischen Objektpotential  $V(\mathbf{r})$  und Phase  $\varphi_{obj}(\hat{\mathbf{r}})$  der zweidimensionalen Objektaustrittswelle  $\psi_{obj}(\hat{\mathbf{r}})$  unter bestimmten Voraussetzungen (s. unten) stark vereinfacht werden. Demnach ist die Phase

$$\varphi_{obj}(\hat{\mathbf{r}}) = C_E \cdot \int_L V(\hat{\mathbf{r}}, z) dz = C_E \cdot V_{proj}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (2.6)$$

proportional zum Linienintegral des 3D-Potentials, wobei die Integration entlang des Pfades  $L$  in  $z$ -Richtung verläuft. Das Linienintegral wird auch projiziertes Potential  $V_{proj}$  genannt. Der Proportionalitätsfaktor zwischen beiden Größen ist die sogenannte Interaktionskonstante  $C_E = 2\pi\gamma m_0 e\lambda/\hbar^2$  (s. auch Gl. A.15). Für Elektronen der kinetischen Energie  $eU_a = 200 \text{ keV}$  ( $U_a$  Beschleunigungsspannung) ist  $C_E = 0.0073^{\text{rad/V nm}}$ .

In Abbildung 2.1 ist eine anschauliche Darstellung der PGA skizziert.



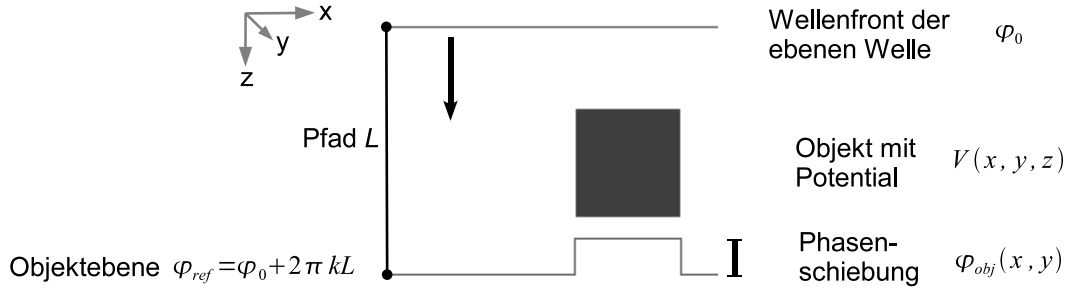


Abbildung 2.1.: Modulation der Objektaustrittswelle nach der Phase-Grating Approximation (PGA). In der PGA kann die durch das Objektpotential  $V(x, y, z)$  verursachte  $z$ -Verbiegung der Wellenfront als Phasenschiebung  $\varphi_{obj}(x, y)$  bezüglich der Phase im Vakuum  $\varphi_{ref}$  in der Objektabene aufgefasst werden.

Ergebnisse umfangreicher Simulationsrechnungen von Lubk et al. (2010) haben gezeigt, dass die PGA für die Phase bei mittlerer Auflösung umso besser gilt,

- je leichter die Atome sind,
- je dünner die Proben sind (nur wenige Monolagen),
- je amorpher die Probe ist oder, bei kristallinen Proben,
- je weiter die Richtung des einfallenden Elektronenstrahls gegen niedrig indizierte Kristallrichtungen (Zonenachsen) verkippt ist.

### 2.1.3. Magnetische Phasenschiebung

Bisher wurde nur die elektrische Wechselwirkung zur Beschreibung der Phasenschiebung der Elektronenwelle im Objekt berücksichtigt. Besitzt ein Objekt jedoch auch ferromagnetische Eigenschaften, so führt dies zu einer zusätzlichen Phasenschiebung aufgrund des (Objekt-)Vektorpotentials  $\mathbf{A}$ . In diesem Fall muss in die genäherte Klein-Gordon Gleichung 2.5 der kanonische Impulsoperator  $\hat{\mathbf{p}} = -\hbar/i\nabla - e\mathbf{A}$  eingesetzt werden. Dies führt in der PGA (s. Anhang A.2) in Lorentz-Eichung zu einem zusätzlichen Beitrag des Vektorpotentials zur Phasenschiebung

$$\varphi_{obj}(x, y) = \int_L \left( C_E \cdot V(x, y, z) - \frac{e}{\hbar} A_z(x, y, z) \right) dz, \quad (2.7)$$

worin  $e$  Elementarladung und  $\hbar$  Plancksches Wirkungsquantum geteilt durch  $2\pi$  bedeuten. Befindet sich Start- und Endpunkt des Pfades  $L$  im magnetfeldfreien Raum und lässt sich  $L$  in selbigem fortsetzen und beim Startpunkt wieder schließen, so kann mithilfe des Satzes von Stokes der magnetische Beitrag zur Objektphasenschiebung durch den Magnetischen Fluss

## 2. Grundlagen der TEM

$$\Phi_{mag}(x, y) = \iint_{\sigma} \mathbf{B}(x, y, z) d\mathbf{S} \quad (2.8)$$

ausgedrückt werden. Darin ist  $\mathbf{B}$  die Magnetische Flussdichte und  $\sigma$  die durch den geschlossenen Pfad umrandete Fläche. Dieses Oberflächenintegral 2. Art kann komponentenweise gelöst werden, indem man die Integration entlang  $\sigma_{yz}$ ,  $\sigma_{zx}$ , den Projektionen der Oberfläche  $\sigma$  auf die  $y$ - $z$ - bzw.  $x$ - $z$ -Ebene, ausführt. Damit folgt schließlich die Objektphasenschiebung in Abhängigkeit der beiden Komponenten  $B_x$  und  $B_y$ , gegeben durch

$$\varphi_{obj}(x, y) = \int_L \left( C_E \cdot V(x, y, z) - \frac{e}{\hbar} \left[ \int_0^y B_x(x, y', z) dy' - \int_0^x B_y(x', y, z) dx' \right] \right) dz. \quad (2.9)$$

### 2.1.4. Amplitudenkontrast

Die Phasenmodulation der Elektronenwelle durch das Potential eines einzelnen Atoms führt durch Propagation und Interferenz schon nach wenigen Angström zur Amplitudenmodulation. Dies kann mittels Streusimulationen, wie bei Lubk (2010) am Beispiel eines Goldatoms, anschaulich demonstriert werden. In kinematischer Näherung, welche für amorphe Proben oder nicht auf Zonenachse orientierte kristalline Proben gilt, lässt sich der elastische Amplitudenkontrast durch Streuabsorption beschreiben. Die Grundlage dafür bildet die Annahme, dass die Intensität  $I$  in der Probe innerhalb des Längenelements  $dz$  um

$$dI = -I n \sigma dz \quad (2.10)$$

geschwächt wird. Darin ist  $\sigma$ , der Wirkungsquerschnitt (Einheit  $1 \text{ barn} = 100 \text{ fm}^2$ ), ein Maß für die Schwächung (Dämpfung) der Intensität durch ein einzelnes Streuzentrum (Atom) und  $n$  die Dichte der Streuzentren. Der Wirkungsquerschnitt hängt über

$$\sigma(\alpha) = \int_{\alpha}^{\pi} |f(\vartheta)|^2 2\pi \sin(\vartheta) d\vartheta \quad (2.11)$$

vom maximal detektierten Streuwinkel  $\alpha$  ab. In dieser Gleichung taucht außerdem die atomspezifische und vom Streuwinkel  $\vartheta$  abhängige Elektronen-Streuamplitude  $|f(\vartheta)|$  auf. Die Integration verläuft über den nicht detektierten Winkelbereich  $\alpha < \vartheta \leq \pi$ .

Die Lösung der Differentialgleichung (2.10) liefert ein exponentielles Dämpfungsverhalten der Intensität

$$I(x, y) = I_0 \exp(-n\sigma t(x, y)) = I_0 \exp\left(-\frac{t(x, y)}{\lambda_{el}}\right) \quad (2.12)$$

mit der mittleren freien Weglänge für elastische Streuung  $\lambda_{el} = 1/n\sigma$  und der i.d.R. ortsabhängigen Objektdicke  $t(x, y)$ . Dies ist der Amplitudenkontrast zur Beschreibung der nichtenergiegefilterten Intensität im TEM bei Annahme, dass die inelastische Streuung innerhalb des Winkelbereichs  $0 \leq \vartheta \leq \alpha$  stattfindet. Betrachtet man jedoch energiegefilterte TEM-Abbildungen und insbesondere holographisch rekonstruierte Amplituden, kommt es zu einer zusätzlichen Dämpfung der Intensität, welche man in erster Näherung analog zur elastischen Streuung durch eine mittlere freie Weglänge für inelastische Streuung  $\lambda_{inel}$  beschreiben kann. Demnach lautet die holographisch rekonstruierte Amplitude

$$A_{obj}(x, y) = A_0 \exp\left(-\frac{t(x, y)}{2\lambda_{el}}\right) \exp\left(-\frac{t(x, y)}{2\lambda_{inel}}\right). \quad (2.13)$$

Im Unterschied zu früheren Arbeiten (z.B. McCartney und Gajdardziska-Josifovska (1994); Gajdardziska-Josifovska und McCartney (1994)) wird hier der Intensitätsverlust durch elastische Streuung mitberücksichtigt. Dies ist auch notwendig, da in eigenen Untersuchungen gefunden wurde, dass beide Beiträge etwa gleich groß sind. Bei schweren Elementen gewinnt noch eine weitere Amplitudendämpfung, die durch die thermische Mittelung, an Bedeutung [Rother et al. (2009); Lubk et al. (2010)].

## 2.2. Abbildungstheorie

Im vorherigen Abschnitt 2.1 wurde besprochen, wie sich die Modulation der Objektaustrittswelle

$$\psi_{obj}(\hat{\mathbf{r}}) = a(\hat{\mathbf{r}}) \exp(i\varphi(\hat{\mathbf{r}})) \quad (2.14)$$

in Amplitude  $a(\hat{\mathbf{r}})$  und Phase  $\varphi(\hat{\mathbf{r}})$  mithilfe grundlegender physikalischer Prinzipien beschreiben lässt. Zur Unterscheidung vom dreidimensionalen Ortsvektor  $\mathbf{r}$  wird hier der zweidimensionale Ortsvektor in ausgezeichneten Ebenen des TEMs als  $\hat{\mathbf{r}} = (x, y)$  bezeichnet.

Dieser Abschnitt behandelt die prinzipielle wellenoptische Beschreibung der Abbildung der Objektaustrittswelle im TEM. Dabei wird zunächst auf die Abbildung mit einer idealen (aberrationsfreien) Linse im Rahmen der Abbe-Theorie eingegangen (Abschn. 2.2.1). Daraufhin erfolgt der Übergang zur wellenoptischen Beschreibung der Abbildung durch eine aberrationsbehaftete Linse (Abschn. 2.2.2). Neben den Bildfehlern (Aberrationen) der Linse muss auch die partielle Kohärenz der abbildenden Elektronen in Betracht gezogen werden (Abschn. 2.2.3). Die damit eingeführten theoretischen Grundlagen sollen schließlich für die Behandlung des Transfers einer schwach modulierten Objektwelle im TEM angewandt werden (Abschn. 2.2.4).

In dieser Arbeit wurden für alle (holographischen) Elektronenmikroskop-Aufnahmen das im Triebenberglabor befindliche Philips CM200FEG ST/LL im Lorentzmodus benutzt. Im Lorentzmodus ist die

Objektivlinse aus-, und stattdessen die Lorentzlinse, eine am unteren Polschuh zusätzlich angebrachte Minikondensor-Linse, eingeschaltet. Die in diesem Kapitel aufgeführten Zahlenbeispiele beziehen sich auf die Abbildungseigenschaften der Lorentzlinse.

### 2.2.1. Abbildung durch ideale Linse

Die Abbildung der Objektaustrittswelle mit einer idealen Linse erfolgt nach der Abbeschen Theorie (Abbildung 2.2) in zwei Schritten:

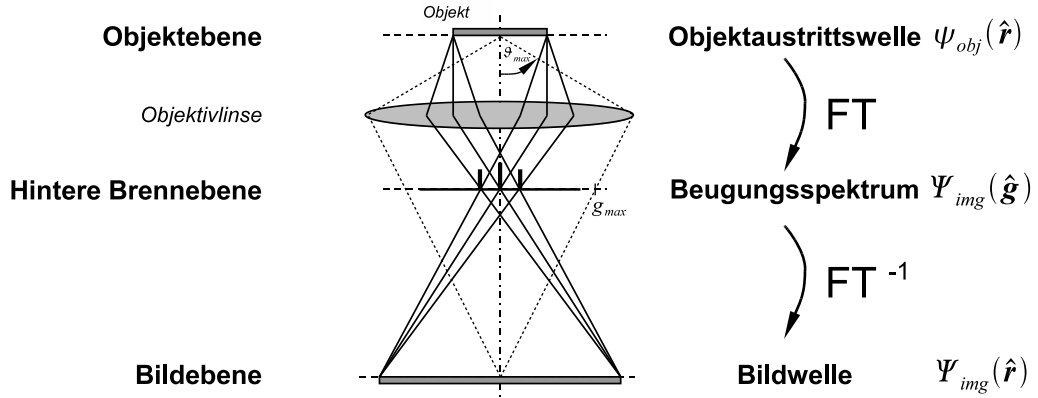


Abbildung 2.2.: Abbildungstheorie nach Abbe. Die Propagation der Objektaustrittswelle  $\psi_{obj}(\hat{r})$  von der Objektebene in die hintere Brennebene der Objektlinse entspricht mathematisch einer Fouriertransformation (FT). Das daraus resultierende Beugungsspektrum ist aufgrund der Apertur der Objektlinse bis  $g_{max}$  bandbegrenzt. Die Weiterpropagation in die Bildebene lässt sich durch eine inverse Fouriertransformation ( $FT^{-1}$ ) ausdrücken. Das Resultat ist die Bildwelle  $\Psi_{img}(\hat{r})$ .

Im ersten Schritt propagiert die Elektronenwelle von der Objektebene durch die Objektlinse in die hintere Brennebene. Da letztere einer Ebene im Fernfeld entspricht, kann der erste Schritt aufgrund der Gültigkeit der Fraunhofer-Näherung durch eine Fouriertransformation (FT) beschrieben werden. Das Ergebnis der FT ist das komplexe Beugungsspektrum im Fourierraum

$$\psi_{obj}^{spec}(\hat{g}) = FT\{\psi_{obj}(\hat{r})\} = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_{obj}(\hat{r}) \exp(-i2\pi\hat{g}\hat{r}) d^2r \quad (2.15)$$

in Abhängigkeit der Raumfrequenz  $\hat{g} = (g_x, g_y)$ . Die Raumfrequenz hängt über  $\hat{g} = \vartheta k$  mit dem Beugungswinkel  $\vartheta = (\vartheta_x, \vartheta_y)$  und der Wellenzahl  $k = 1/\lambda$  zusammen. Durch den endlichen Öffnungswinkel der Objektlinse  $\vartheta_{max}$  wird jedoch das Objektspektrum im Fourierraum durch eine Blende (Apertur)  $E(\hat{g})$  vom Radius  $g_{max} = k\vartheta_{max}$  begrenzt. Dieses bandbegrenzte Objektspektrum wird hier

Bildspektrum

$$\Psi_{img}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = \psi_{obj}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) E(\hat{\mathbf{g}}), \text{ mit } E(\hat{\mathbf{g}}) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\hat{\mathbf{g}}| \leq g_{max} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.16)$$

genannt.

Im zweiten Schritt breiten sich von den Punktquellen in der hinteren Brennebene Kugelwellen zur Bildebene aus. Die Interferenz der von den Punktquellen ausgehenden, im Fernfeld ebenen Wellen führt schließlich zur Bildwelle  $\Psi_{img}(\hat{\mathbf{r}})$ , die mittels der inversen Fouriertransformation ( $FT^{-1}$ ) zu

$$\Psi_{img}(\hat{\mathbf{r}}) = FT^{-1} \{ \Psi_{img}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \} = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_{obj}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) E(\hat{\mathbf{g}}) \exp(i2\pi\hat{\mathbf{g}}\hat{\mathbf{r}}) d^2\hat{\mathbf{g}} \quad (2.17)$$

berechnet werden kann. Mit dem Faltungssatz für das Produkt in obiger Formel rechts kann die Bildwelle

$$\Psi_{img}(\hat{\mathbf{r}}) = \psi_{obj}(\hat{\mathbf{r}}) \otimes \text{Airy}(\hat{\mathbf{r}}) \quad (2.18)$$

als Objektwelle gefaltet mit der Airy-Funktion (inverse FT der Kreisblende  $E(\hat{\mathbf{g}})$ ) geschrieben werden. Dies führt zur Verschmierung eines jeden Punktes der Objektwelle, weswegen die Airy-Funktion als Point-Spread-Function (PSF) der Abbildung mit einer idealen Linse bezeichnet werden kann. Der Abstand  $\delta$  vom Maximum bis zur ersten Nullstelle der Airy-Funktion wird als Abbe-Auflösungsgrenze

$$\delta = 0.61 \frac{\lambda}{\sin(\vartheta_{max})} \quad (2.19)$$

bezeichnet. Obwohl dieser Wert für 200keV-Elektronen wegen  $\lambda = 2.51 pm$  bei wenigen Pikometern liegt, ist die Auflösungsgrenze eines modernen TEMs bestenfalls  $0.5 \text{ \AA}$  und damit um ca. zwei Größenordnungen höher. Dies ist auf die Aberrationen der Objektivlinse zurückzuführen, auf welche im folgenden Abschnitt eingegangen wird.

### 2.2.2. Abbildung durch fehlerbehaftete Linse

Der Einfluss der kohärenten Bildfehler (Aberrationen) der Objektivlinse auf die Elektronenwelle lässt sich anschaulich als Abweichung von der eigentlichen Modulation der Wellenfront durch eine ideale Linse verstehen. Diese Abweichung ist als raumfrequenzabhängige Phasenplatte  $\chi_{mic}(\mathbf{g})$  (Wellenaberration) in der hinteren Brennebene darstellbar. Dies ist zulässig, da im TEM nur kleine Beugungswinkel ( $< 50 mrad$ ) zur Abbildung beitragen. Die ersten Glieder sind in der Koeffizientennotation von Uhlemann und Haider (1998) in Polarkoordinaten

## 2. Grundlagen der TEM

$\hat{\mathbf{g}} = (g_r, g_\varphi)$  wie folgt definiert:

$$\chi_{mic}(\hat{\mathbf{g}}) = 2\pi k \left[ \begin{array}{ll} \frac{1}{2}C_1 \left(\frac{g_r}{k}\right)^2 & \text{Defokus} \\ + \frac{1}{2}A_1 \left(\frac{g_r}{k}\right)^2 \cos(g_\varphi^{A1} - 2g_\varphi) & \text{zweizähliger Astigmatismus} \\ + \frac{1}{3}A_2 \left(\frac{g_r}{k}\right)^3 \cos(g_\varphi^{A2} - 3g_\varphi) & \text{dreizähliger Astigmatismus} \\ + B_2 \left(\frac{g_r}{k}\right)^3 \cos(g_\varphi^{B2} + g_\varphi) & \text{axiale Koma} \\ + \frac{1}{4}C_3 \left(\frac{g_r}{k}\right)^4 & \text{sphärische Aberration} \\ + \dots & \end{array} \right]. \quad (2.20)$$

Zur Berücksichtigung der kohärenten Aberrationen auf den Abbildungsprozess wird zunächst das Spektrum der Objektwelle mit der kohärenten Wellentransferfunktion

$$\text{WTF}^{coh}(\hat{\mathbf{g}}) = \exp(-i\chi_{mic}(\hat{\mathbf{g}})) \quad (2.21)$$

multipliziert. Das Produkt ist das Spektrum der Bildwelle

$$\Psi_{img}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = \Psi_{obj}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \exp(-i\chi_{mic}(\hat{\mathbf{g}})), \quad (2.22)$$

welches sich im OR (Bildebene) wieder als Faltung formulieren lässt. Das Resultat wird hier kohärente Bildwelle

$$\Psi_{img}^{coh}(\hat{\mathbf{r}}) = \psi_{obj}(\hat{\mathbf{r}}) \otimes \text{FT}^{-1} \{ \exp[-i\chi_{mic}(\hat{\mathbf{g}})] \} \quad (2.23)$$

genannt.

### 2.2.3. Partiiell kohärente Abbildung durch fehlerbehaftete Linse

Bei der partiellen Kohärenz unterscheidet man zwischen partieller zeitlicher Kohärenz (Längenkohärenz) und partieller räumlicher Kohärenz (Winkelkohärenz).

Die partielle zeitliche Kohärenz (Längenkohärenz) der zur Abbildung im TEM beitragenden Elektronen ist durch die folgenden drei Faktoren gegeben:

1. die Energieverteilung  $\Delta E$  der von der Quelle emittierten Elektronen,
2. die Instabilitäten  $\Delta U_A$  in der Beschleunigungsspannung  $U_A$  und
3. die Instabilitäten  $\Delta I$  in den Linsenströmen  $I$ .

Diese drei Faktoren unterliegen stochastischen Prozessen, deren statistische Ensembles im einfachsten Fall durch Normalverteilungen beschreibbar sind. Infolge der chromatischen Aberration  $C_c$  (Farbfehlerkoeffizient) der Objektivlinse, werden Elektronen verschiedener Energien in der Bildebene unterschiedlich fokussiert abgebildet. Dies wird durch die defokusabhängige Normalverteilung

$$f(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\Delta} \exp\left(-\left(\frac{z}{\Delta}\right)^2\right) \quad (2.24)$$

in der Abbildung berücksichtigt. Die  $1/e$ -Breite dieser Verteilung  $\Delta$ , die sogenannte Defokusschwankung, berechnet sich zu

$$\Delta = C_c \sqrt{\left(\frac{\Delta E}{eU_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta U_A}{U_A}\right)^2 + \left(2\frac{\Delta I}{I}\right)^2}. \quad (2.25)$$

Der Wert der Defokusschwankung der Lorentzlinse  $C_C = 41 \text{ mm}$  beträgt etwa  $200 \text{ nm}$ .

Die partielle räumliche Kohärenz (Winkelkohärenz) der Elektronen ist durch die endliche Ausdehnung der Elektronenquelle gegeben. Der räumlichen Verteilung der Quelle entspricht in der Objektebene eine vom Beleuchtungswinkel  $\vartheta$  abhängige Verteilung  $s(\vartheta)$ . Bei Annahme einer rotationssymmetrischen Normalverteilung der Quelle folgt aus der Beziehung zwischen radialer Komponente der Raumfrequenz und Beleuchtungswinkel  $q = k\vartheta$  die Verteilung im Fourierraum

$$s(q) = \frac{1}{\pi q_0^2} \exp\left(-\left(\frac{q}{q_0}\right)^2\right) \quad (2.26)$$

mit der Standardabweichung  $q_0$ . Häufig wird auch der zu  $q_0$  gehörende Semikonvergenzwinkel  $\vartheta_c = q_0/k$  ( $\vartheta_c \approx 0.15 \text{ mrad}$  für Feldemissionsquellen) angegeben.

Infolge der partiellen Kohärenz erhält man eine gemittelte Wellenfunktion<sup>3</sup>

$$\Psi_{img}^{ave}(\hat{\mathbf{r}}) = \iint_{-\infty}^{+\infty} f(z) s(q) \Psi_{img}(\hat{\mathbf{r}}, z, q) dz dq, \quad (2.27)$$

gegeben durch das Integral über alle Defoki und Beleuchtungsrichtungen  $z$  und  $q$ , welche nach Maßgabe der Funktionen  $f(z)$  und  $s(q)$  beitragen. Diese Mittelung lässt sich wiederum als Produkt der Fouriertransformierten der kohärenten Bildwelle (Gl. 2.22) mit der räumlichen Envelope (aufgrund partieller räumlicher Kohärenz)

$$E_{sc}(\hat{\mathbf{g}}) = \exp\left(-\left(\frac{k\vartheta_c}{2}\right)^2 (\nabla_{\chi}(\hat{\mathbf{g}}))^2\right) \quad (2.28)$$

und der zeitlichen Envelope (aufgrund partieller zeitlicher Kohärenz)

$$E_{tc}(\hat{\mathbf{g}}) = \exp\left(-\left(\frac{\pi\Delta}{2k}\right)^2 |\hat{\mathbf{g}}|^4\right) \quad (2.29)$$

---

<sup>3</sup>Die gemittelte Wellenfunktion lässt sich nicht direkt aufzeichnen, wohl aber mittels holographischer Methoden der dazu proportionale Ausdruck  $\Psi_{ref}^* \Psi_{img}^{inc}(\hat{\mathbf{r}})$  mit der konstanten Referenzwelle  $\Psi_{ref}^*$  rekonstruieren.

## 2. Grundlagen der TEM

ausdrücken [Frank (1973); Ishizuka (1980)]. Dadurch kann die gemittelte Bildwelle auch als

$$\Psi_{img}^{ave}(\hat{\mathbf{r}}) = \text{FT}^{-1} \{ \psi_{obj}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \exp[-i\chi_{mic}(\hat{\mathbf{g}})] E_{sc}(\hat{\mathbf{g}}) E_{tc}(\hat{\mathbf{g}}) \} \quad (2.30)$$

geschrieben werden. Für die damit verbundene Verringerung der Auflösung sind weder die partielle Kohärenz noch die Abbildungsfehler der Objektivlinse allein verantwortlich. Erst das Zusammenspiel von partieller zeitlicher Kohärenz und chromatischer Aberration, bzw. von partieller räumlicher Kohärenz und der Wellenaberration führt zur Verringerung der Auflösung.

Die Beschreibung der partiellen Kohärenz mittels Enveloppen ist auf die lineare Abbildung begrenzt. Letzteres ist in der off-axis Elektronenholographie stets gewährleistet, dagegen ist in der konventionellen Transmissionselektronenmikroskopie nur die Abbildung schwacher Amplituden- und Phasenobjekte linear. Die allgemeine Behandlung des Einflusses der partiellen Kohärenz auf TEM-Abbildungen führt zum Transmissionskreuzkoeffizienten (TCC) [Born und Wolf (1980); Ishizuka (1980)].

### 2.2.4. Abbildung schwacher Objekte

Bei Annahme eines schwachen Objektes sind die Modulationen der Objektaustrittswelle

$$\psi_{obj}(\hat{\mathbf{r}}) = a(\hat{\mathbf{r}}) + i\varphi(\hat{\mathbf{r}}) \quad (2.31)$$

sowohl in Amplitude ( $a(\hat{\mathbf{r}}) \approx 1$ ) als auch in Phase ( $\varphi(\hat{\mathbf{r}}) \ll 1$ ) sehr klein. Diese Näherung bewirkt, dass Amplitude und Phase jeweils Real- und Imaginärteil der Objektwelle entsprechen. Zur Berechnung der aberrationsbehafteten Bildwelle wird unter Ausnutzung der Linearität der Fouriertransformation das Spektrum der Objektwelle

$$\psi_{obj}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = [\text{FT} \{a(\hat{\mathbf{r}})\} + i\text{FT} \{\varphi(\hat{\mathbf{r}})\}] = a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) + i\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \quad (2.32)$$

berechnet. Danach wird  $\psi^{spec}(\hat{\mathbf{g}})$  mit der kohärenten Wellentransferfunktion (Gl. 2.21)

$$\exp[-i\chi(\hat{\mathbf{g}})] = -\cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) - i\sin(\chi(\hat{\mathbf{g}})) \quad (2.33)$$

multipliziert, woraus folgt:

$$\Psi_{img}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = [a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) + i\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}})] \cdot [-\cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) - i\sin(\chi(\hat{\mathbf{g}}))] \quad (2.34)$$

$$= \begin{aligned} & [-a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) + \varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \sin(\chi(\hat{\mathbf{g}}))] \\ & + i [-\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) - a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \sin(\chi(\hat{\mathbf{g}}))] \end{aligned} \quad (2.35)$$

Die zweite Zeile kann als Amplitudenspektrum

$$\text{FT} \{A(\hat{\mathbf{r}})\} = A^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = -a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) + \varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \sin(\chi(\hat{\mathbf{g}})), \quad (2.36)$$



und die dritte Zeile als Phasenspektrum

$$\text{FT} \{ \Phi(\hat{\mathbf{r}}) \} = \Phi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) = -\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \cos(\chi(\hat{\mathbf{g}})) - a^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) \sin(\chi(\hat{\mathbf{g}})) \quad (2.37)$$

der Bildwelle

$$\Psi_{img}(\hat{\mathbf{r}}) = A(\hat{\mathbf{r}}) + i\Phi(\hat{\mathbf{r}}) \quad (2.38)$$

identifiziert werden. Abbildung 2.3 veranschaulicht die Übertragung einer schwach modulierten Objektwelle im TEM.

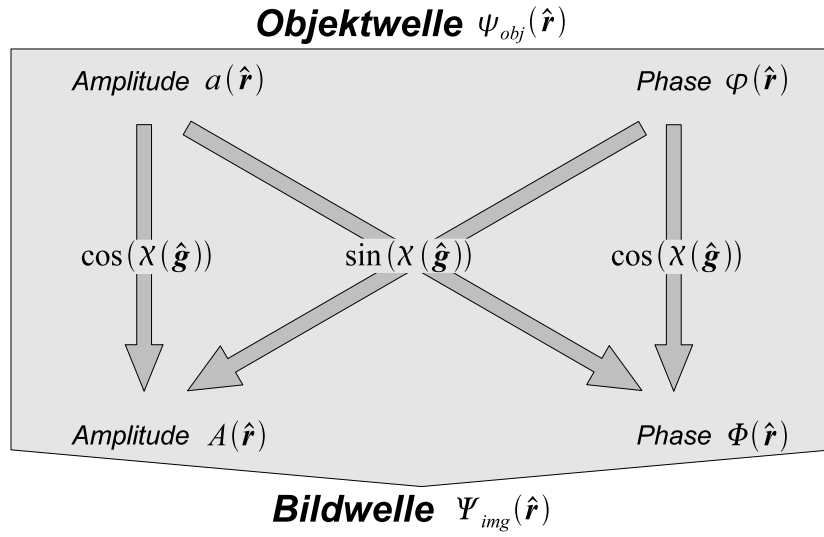


Abbildung 2.3.: Übertragung einer schwach modulierten Objektwelle im TEM. Der Informationstransfer von der Objektwelle in die Bildwelle wird durch die Wellenaberration  $\chi$  der Objektivlinse bestimmt. Demnach beschreibt der Realteil der Wellentransferfunktion (WTF)  $\cos(\chi(\hat{\mathbf{g}}))$  die Übertragung von Amplitude zu Amplitude bzw. Phase zu Phase. Dagegen beschreibt der Imaginärteil der WTF  $\sin(\chi(\hat{\mathbf{g}}))$  die Übertragung von Phase zu Amplitude bzw. von Amplitude zu Phase.

Für eine weitere Analyse muss man zwischen dem Einfluss der symmetrischen Aberrationen

$$\chi_s(\hat{\mathbf{g}}) = 1/2 (\chi(\hat{\mathbf{g}}) + \chi(-\hat{\mathbf{g}})) \quad (2.39)$$

und dem der antisymmetrischen Aberrationen

$$\chi_a(\hat{\mathbf{g}}) = 1/2 (\chi(\hat{\mathbf{g}}) - \chi(-\hat{\mathbf{g}})) \quad (2.40)$$

unterscheiden. Die Funktion  $\sin(\chi_s(\hat{\mathbf{g}}))$  moduliert die jeweils gegenüberliegenden Reflexamplitudenpaare  $|\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}})|$  und  $|\varphi^{spec}(-\hat{\mathbf{g}})|$  im Amplitudenspektrum

## 2. Grundlagen der TEM

der Bildwelle (2.36) symmetrisch. Dies führt zu einer Änderung des Objektphasenkontrastes in der Amplitude der Bildwelle. Dagegen moduliert die Funktion  $\sin(\chi_a(\hat{\mathbf{g}}))$  die Reflexamplituden  $|\varphi^{spec}(\hat{\mathbf{g}})|$  und  $|\varphi^{spec}(-\hat{\mathbf{g}})|$  antisymmetrisch (Sinus antisymmetrisch). Dies lässt den Kontrast in der Amplitude der Bildwelle unbeeinflusst, führt jedoch zu einer Änderung der Lateralphase der den Reflexpaaren entsprechenden Kosinusschwingungen im Ortsraum (Bildverschiebung).

Da man in der konventionellen Elektronenmikroskopie nur Zugang zur Amplitude der Bildwelle besitzt, wird die Funktion  $\sin(\chi_s(\hat{\mathbf{g}}))$ , welche den Kontrast von der Objektphase in die Bildamplitude überträgt, als Phasenkontrasttransferfunktion (PCTF) bezeichnet. Dementsprechend wird die Funktion  $\cos(\chi_s(\hat{\mathbf{g}}))$ , welche den Kontrast von der Objekt- in die Bildamplitude überträgt, als Amplitudenkontrasttransferfunktion (ACTF) bezeichnet.

Die PCTF wird durch Einstellen des sogenannten Scherzerfokus [Scherzer (1949)] optimiert, welcher sich aus sphärischer Aberration  $C_3$  und Wellenzahl  $k$  zu

$$C_1^{Scherzer} = -1.2\sqrt{\frac{C_3}{k}} \quad (2.41)$$

berechnet. Damit wird innerhalb eines möglichst breiten Frequenzbandes, dem sogenannten Scherzerband, ein möglichst hoher und gleichmäßiger Kontrasttransfer gewährleistet. Die maximal übertragene Raumfrequenz

$$\hat{\mathbf{g}}_{res} = 1.5\sqrt[4]{\frac{k^3}{C_3}}, \quad (2.42)$$

wird über die erste Nullstelle der Funktion  $\sin(\chi_s(\hat{\mathbf{g}}))$  definiert. Ihr reziproker Wert wird als Punktauflösung bezeichnet.

Auch die ACTF kann auf ähnliche Weise wie die PCTF optimiert werden. Der zugehörige Defokuswert wird Gaborfokus genannt und ist gegeben durch

$$C_1^{Gabor} = -0.67\sqrt{\frac{C_3}{k}}. \quad (2.43)$$

Abbildung 2.4 zeigt die ACTF im Gaborfokus und die PCTF im Scherzerfokus bei Benutzung der Parameter des Philips CM200FEG ST/LL im Lorentzmodus. Darin ist rechts auch der Einfluss der sphärischen und räumlichen Enveloppe aufgrund der partiellen Kohärenz veranschaulicht.

Wegen des Vorteils der off-axis Elektronenholographie (EH) gegenüber der konventionellen Elektronenmikroskopie auch Zugang zur Bildphase zu besitzen, ist insbesondere die ACTF in Abb. 2.4 (B) von Bedeutung. Sie zeigt im Gegensatz zur PCTF (Abb. 2.4 D) innerhalb der Frequenzbandes von  $0\text{ nm}^{-1}$  bis ca.  $0.3\text{ nm}^{-1}$  durchgängig eine Kontrastübertragung  $\geq 0.8$ . Die off-axis EH liefert damit auch bei der Abbildung größerer schwacher Phasenobjekte, welche bspw. in der Zellbiologie von Interesse sind, praktisch optimalen Kontrasttransfer.

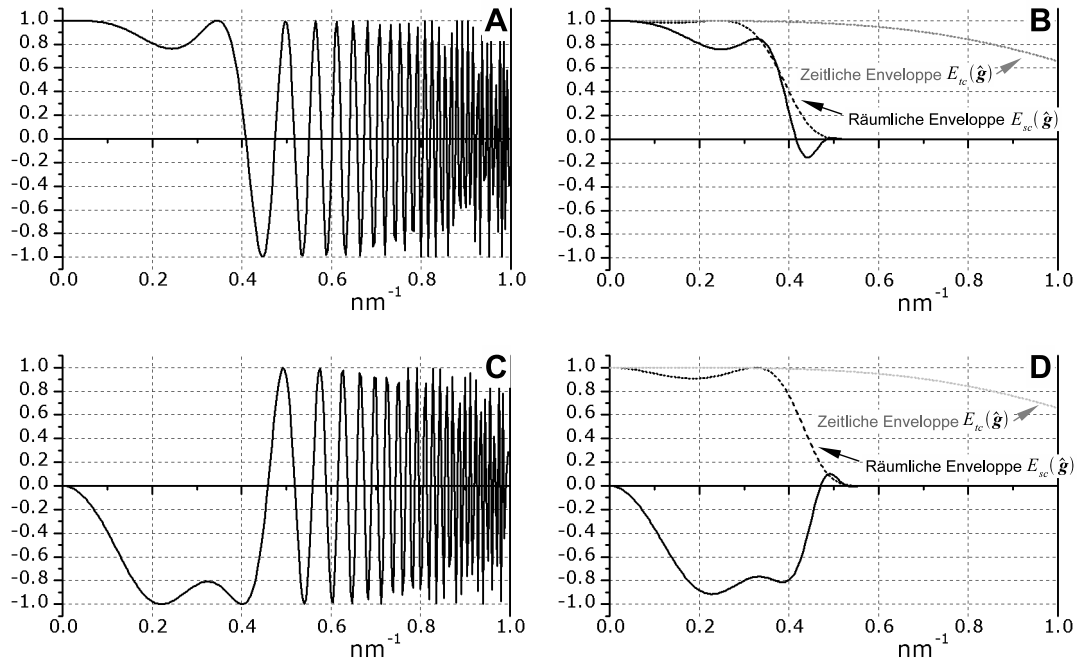


Abbildung 2.4.: Wellentransferfunktionen der Lorentzlinse. Für die Berechnung wurden die folgenden Werte des Philips CM200FEG ST/LL im Lorentzmodus verwendet:  $C_3 = 8\text{ m}$ ,  $C_c = 41\text{ mm}$ ,  $\Delta E = 0.8\text{ eV}$ ,  $\vartheta_c = 0.15\text{ mrad}$ . Die partielle Kohärenz findet jeweils durch zeitliche und räumliche Enveloppe (Gl. 2.29 und 2.28) Berücksichtigung.

**A:** Realteil bei kohärenter Abbildung im Gaborfokus

$$C_1^{Gabor} = 3.0\text{ }\mu\text{m}.$$

**B:** Realteil (ACTF) bei partiell kohärenter Abbildung im Gaborfokus  $C_1^{Gabor} = 3.0\text{ }\mu\text{m}$ .

**C:** Imaginärteil bei kohärenter Abbildung im Scherzerfokus  $C_1^{Scherzer} = 5.3\text{ }\mu\text{m}$ .

**D:** Imaginärteil (PCTF) bei partiell kohärenter Abbildung im Scherzerfokus  $C_1^{Scherzer} = 5.3\text{ }\mu\text{m}$ .

## 2.3. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass es nur unter Berücksichtigung der Welleneigenschaften des Elektrons möglich ist, sowohl dessen Wechselwirkung mit dem zu untersuchenden Objekt, als auch dessen Propagation im Elektronenmikroskop zu beschreiben. Demnach ist die interessierende Objektinformation in der Amplituden- und Phasenmodulation der Bildwelle zu finden. Sobald jedoch die Elektronenwelle auf einen Detektor (z.B. CCD-Kamera<sup>4</sup>) trifft, wird nur das Amplitudenquadrat aufgezeichnet und die Phaseninformation geht verloren. Gerade aber die Phase steht in direktem Zusammenhang zu den

<sup>4</sup>CCD steht für Charged Coupled Device.

## 2. Grundlagen der TEM

elektrostatischen Potentialen (MIP, Diffusionspotential) und magnetischen Feldern (Abschn. 2.1, Gl. 2.9).

Durch hinreichend starke Defokussierung der Objektivlinse (vgl. PCTF in Abb. 2.4 C) ließe sich zwar ein Teil der elektrischen und magnetischen (Lorentz-Mikroskopie) Phasenschiebung in die aufgezeichnete Bildintensität übertragen (Differentieller Phasenkontrast, Abschn. 2.2.4). Die so aufgezeichnete Intensität ist aber nur qualitativ interpretierbar und birgt Artefakte (Fresnelsäume an den Objekträndern, Übertragungslücken, etc.). Erst die Anwendung der off-axis Elektronenholographie (EH), welche im nächsten Kapitel eingeführt wird, ermöglicht den perfekten Zugang zur Phase und damit zu den elektrostatischen Potentialen und magnetischen Feldern.

## 3. Off-axis Elektronenholographie

In der off-axis Elektronenholographie (EH) wird statt der konventionellen Intensität (TEM-Abbildung) ein Interferenzmuster von Bildwelle und überlagerter leerer Referenzwelle (Elektronenhologramm) aufgezeichnet. Aus dem Elektronenhologramm lässt sich im Anschluss die komplexe Bildwelle in Amplitude und Phase rekonstruieren.

Obwohl eine Reihe von holographischen Techniken neben der off-axis Elektronenholographie existieren [Cowley (1992)] - darunter sind die beiden Rekonstruktionsmethoden aus Fokusserien [Coene et al. (1996)] und Kippserien<sup>1</sup> [Kirkland et al. (1995)] die wohl verbreitesten - hat sich in mittlerer Auflösung die off-axis EH als die leistungsfähigste herausgestellt Koch und Lubk (2010).

Zur Einführung der EH werden in den ersten drei Abschnitten dieses Kapitels, Prinzip (Abschn. 3.1), Aufzeichnung des Hologramms (Abschn. 3.2) und Rekonstruktion der Bildwelle (Abschn. 3.3) genauer erläutert. In Abschnitt 3.4 wird der Einfluss der Aberrationen auf das rekonstruierte Phasenbild bei mittlerer Auflösung näher beleuchtet. Des Weiteren wird analysiert, wie sich das Rauschen in einem Elektronenhologramm auf das daraus rekonstruierte Phasenbild (Abschn. 3.5), und die aus der Phase berechnete Potentialverteilung (Abschn. 3.6) auswirkt. Abschließend werden in Abschnitt 3.7 verschiedene *Phase Unwrapping* Algorithmen vorgestellt, mit denen die zum projizierten Objektpotential proportionale Gesamtphasenschiebung ermittelt werden kann.

### 3.1. Holographisches Prinzip

Im Jahr 1948 stellte Gabor ein neues mikroskopisches Prinzip vor, welches es ermöglichen sollte, die durch die sphärische Aberration (Öffnungsfehler) von elektronenmikroskopischen Linsen begrenzte Auflösungsgrenze von  $5\text{\AA}$  zu unterschreiten [Gabor (1948, 1949)]. Zu diesem Zweck erfolgt im ersten Schritt (nach Gabor: *electronic analysis*) die Aufzeichnung des Fresnel-Beugungsmusters eines defokussiert abgebildeten Objektes auf einer Photoplatte (Hologramm). Im zweiten Schritt (nach Gabor: *optical synthesis*) wird das Hologramm mithilfe einer Lichtoptik, welche den Öffnungsfehler korrigiert, rekonstruiert. Gabors Methode beinhaltete jedoch zwei wesentliche Problematiken. Zum einen besaßen die damaligen Elektronenquellen einen zu geringen Richtstrahlwert und damit nicht genügend Intensität bei kohärenter Beleuchtung. Zum anderen wurde die eigentliche

---

<sup>1</sup>Im Unterschied zu tomographischen Kippserien wird hier die Beleuchtung gekippt.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

rekonstruierte Welle von einem sogenannten Zwillingsbild<sup>2</sup> (twin image) überlagert.

Diese Herausforderungen wurden zuerst in der Lichtmikroskopie mit der Entwicklung der off-axis Holographie bewältigt [Leith und Upatnieks (1962)]. Zum einen steigerte der Einsatz von Lasern den Richtstrahlwert und damit den kohärenten Strom. Zum anderen wurde das Problem des Zwillingsbildes durch Benutzung eines Strahlteilers gelöst, der die beiden Teilwellen, Objekt- und Referenzwelle, erst zueinander (off-axis) verkippt und dann überlagert<sup>3</sup>. 13 Jahre später gelang es dann Wahl (1975), mithilfe von hochkohärenten Feldemissionsquellen (FEG) und eines elektrostatischen Biprismas nach Möllenstedt und Düker [Möllenstedt und Düker (1955, 1956)], die off-axis-Holographie auch in der Elektronenmikroskopie zu realisieren.

Das Prinzip der modernen off-axis Elektronenholographie, welche die Rekonstruktion von Objektwellen bis hin zu atomarer Auflösung erlaubt [Lichte (1986); Lehmann und Lichte (2002)], ist in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt: Das Elektronenhologramm wird im Elektronenmikroskop durch eine slow-scan CCD-Kamera aufgezeichnet, in den Computer eingelesen, und daraus die Objektwelle rekonstruiert. Zur Rekonstruktion der Objektwelle gehört auch die numerische Korrektur der Wellenaberration  $\chi(\mathbf{g})$  der Objektivlinse. Dies verwirklicht Gabors Idee einer Verbesserung der Auflösung durch nachträgliche Bildkorrektur. In der Tat war dies mittels EH [Lichte (1991)] bereits mehrere Jahre vor dem ersten aberrationskorrigierten TEM [Haider et al. (1998)] möglich. Die in der heutigen Zeit standardmäßige Benutzung von aberrationskorrigierten TEMs hat die hochauflösende EH keineswegs überflüssig werden lassen. Im Gegenteil: die Verwendung von aberrationskorrigierten TEMs steigert noch die Leistungsfähigkeit der Elektronenholographie [Geiger et al. (2008)], wie kürzlich am Beispiel einer Goldprobe von [Linck (2010)] eindrucksvoll demonstriert wurde.

## 3.2. Aufzeichnung des Elektronenhologramms

Für die Aufzeichnung eines off-axis Elektronenhologramms in einem konventionellen TEM mit Feldemissionsquelle (FEG) benötigt man ein Möllenstedtsches Biprisma [Möllenstedt und Düker (1955, 1956)]. Dieses elektrostatische Biprisma ist ein mit Gold oder Platin bedampfter, ca. 300-600 nm dicker Glasfaden, der gemeinsam mit zwei Erdungsbacken im Selected-Area Blendenhalter des Elektronenmikroskops montiert wird. Für die Realisierung eines holographischen Setups wird die erste Zwischenbildebene durch schwächere Anregung der Objektivlinse und stärkere Anregung der nachfolgenden Beugungslinse nach unten verschoben. Dadurch befindet sich das Biprisma entsprechend der Abbildung (3.2) zwischen der hinteren Brennebene der Objektivlinse und der ersten Zwischenbildebene. Weiterhin wird das Objekt nur zur Hälfte im Strahlengang platziert, so dass lediglich ein Teil der

---

<sup>2</sup>Das Zwillingsbild entspricht dem Interferenzterm zwischen der Referenzwelle und dem konjugiert Komplexen der Objektwelle.

<sup>3</sup>Dadurch kann das Zwillingsbild über Fourieranalyse entfernt werden, wie unten detailliert beschrieben.

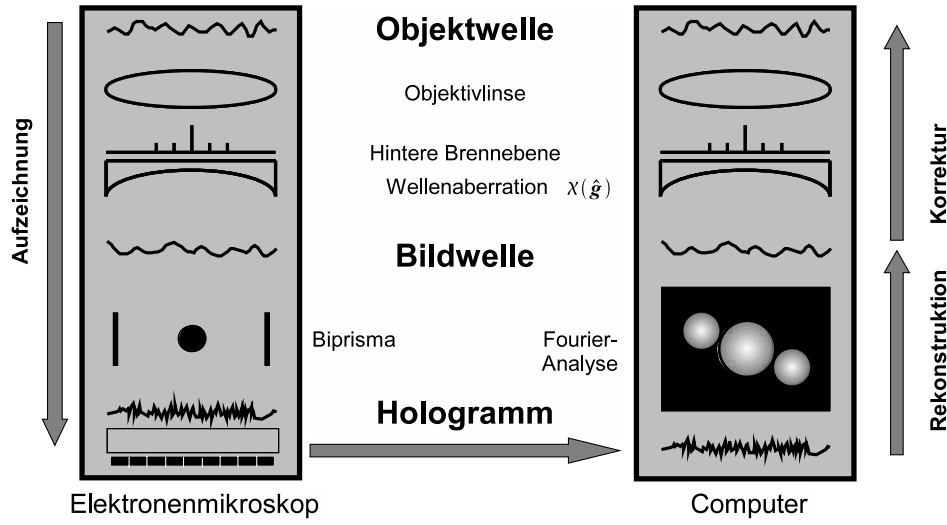


Abbildung 3.1.: Holographisches Prinzip bestehend aus Aufzeichnung des Elektronenhologramms im Elektronenmikroskop (links) und Rekonstruktion der Objektwelle im Computer (rechts).

Elektronenwelle, die Objektwelle, das Objekt transmittiert. Der andere Teil, die sogenannte Referenzwelle, passiert die Objektebene unbeeinflusst. Bei nachfolgender Propagation der beiden Teilwellen durch die Objektivlinse wird die Objektwelle aufgrund der Bildfehler der Linse zur aberrationsbehafteten Bildwelle moduliert (vgl. Abschn. (2.2.2)). Die positive Fadenspannung  $U_F$  am Biprisma sorgt dafür, dass die beiden Teilwellen, Referenz- und Bildwelle, um  $\pm \hat{g}_c/2$  zueinander verkippt werden. Dabei ist in guter Näherung  $\hat{g}_c \propto U_F$ . Die Propagation der gekippten Referenzwelle  $\Psi_0 = A_0 \exp(-i2\pi (\hat{g}_c/2) \hat{r})$  und der dazu entgegengesetzt gekippten Bildwelle  $\Psi_{ima} = A_{ima} \exp(i(\Phi_{ima}(\hat{r}) + 2\pi (\hat{g}_c/2) \hat{r}))$  führt zur Überlagerung beider Wellen in der ersten Zwischenbildebene. Abschließend wird das aus der partiell kohärenten Überlagerung der beiden Wellen entstandene, und durch nachfolgende Projektivlinsen stark vergrößerte Interferenzmuster, das sogenannte Elektronenhologramm<sup>4</sup>

$$I_{hol}(\hat{r}) = I_0 + I_{ima}(\hat{r}) + 2\mu(\hat{g}_c) A_0 A_{ima}(\hat{r}) \cos(2\pi \hat{g}_c \hat{r} + \Phi_{ima}(\hat{r}) - \gamma(\hat{r})) \quad (3.1)$$

von der CCD-Kamera aufgezeichnet.

Das Elektronenhologramm besteht aus den beiden Intensitäten von Referenz- und Bildwelle  $I_0$  und  $I_{ima}$  sowie dem Interferenzterm (Kosinusterm), dessen Argument die sogenannte Trägerfrequenz des Elektronenhologramms  $\hat{g}_c$ , die Phase der Bildwelle  $\Phi_{ima}(\hat{r})$  und eine weitere Phasenfunktion  $\gamma(\hat{r})$  enthält. Letztere beschreibt die ortsabhängige Verbiegung der Interferenzstreifen als Folge geometrischer Verzeichnungen, welche von Biprisma, Projektivlinsen und CCD-Glasfaseroptik

<sup>4</sup>Der Einfachheit halber wird das Elektronenhologramm auf die Objektebene bezogen, d.h. Vergrößerung und Bilddrehung zwischen Objekt- und Bildebene bleiben unberücksichtigt.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

verursacht werden. Der Vorfaktor des Interferenzterms ist gegeben durch die Amplituden von Referenz- und Bildwelle  $A_0$  und  $A_{ima}$  und den Faktor

$$\mu(\hat{\mathbf{g}}_c) = \mu_{coh}(\hat{\mathbf{g}}_c) \mu_{MTF}(\hat{\mathbf{g}}_c) \mu_{inst}. \quad (3.2)$$

Dieser setzt sich zusammen aus  $\mu_{coh}(\hat{\mathbf{g}}_c)$ , dem Kohärenzgrad der Beleuchtung,  $\mu_{MTF}(\hat{\mathbf{g}}_c) = MTF(\hat{\mathbf{g}}_c)$ , dem Wert der Modulations-Transfer-Funktion (MTF) der CCD-Kamera für die Trägerfrequenz  $\hat{\mathbf{g}}_c$  und  $\mu_{inst}$ , der schwer zu quantifizierenden Kontrastdämpfung durch Instabilitäten (mechanisch, elektromagnetisch) während der Aufnahme.

Somit ist die gesuchte Amplitude der Bildwelle  $A_{ima}$  im ortsabhängigen Kontrast, die Phase  $\Phi_{ima}(\hat{\mathbf{r}})$  in der ortsabhängigen Verschiebung der Interferenzstreifen kodiert.

Um die unerwünschten Phasenschiebungen  $\gamma(\hat{\mathbf{r}})$  in der Bildphase später bei deren Rekonstruktion zu korrigieren, muss zusätzlich zum Objekthologramm bei möglichst identischen experimentellen Bedingungen ein Leerhologramm ohne Objekt

$$I_{empty}(\hat{\mathbf{r}}) = 2I_0 + 2\mu(\hat{\mathbf{g}}_c) A_0 \cos(2\pi\hat{\mathbf{g}}_c\hat{\mathbf{r}} - \gamma(\hat{\mathbf{r}})) \quad (3.3)$$

aufgenommen werden. Das Leerhologramm bietet für die Rekonstruktion noch weitere Vorteile, auf welche im nächsten Abschnitt genauer eingegangen wird.

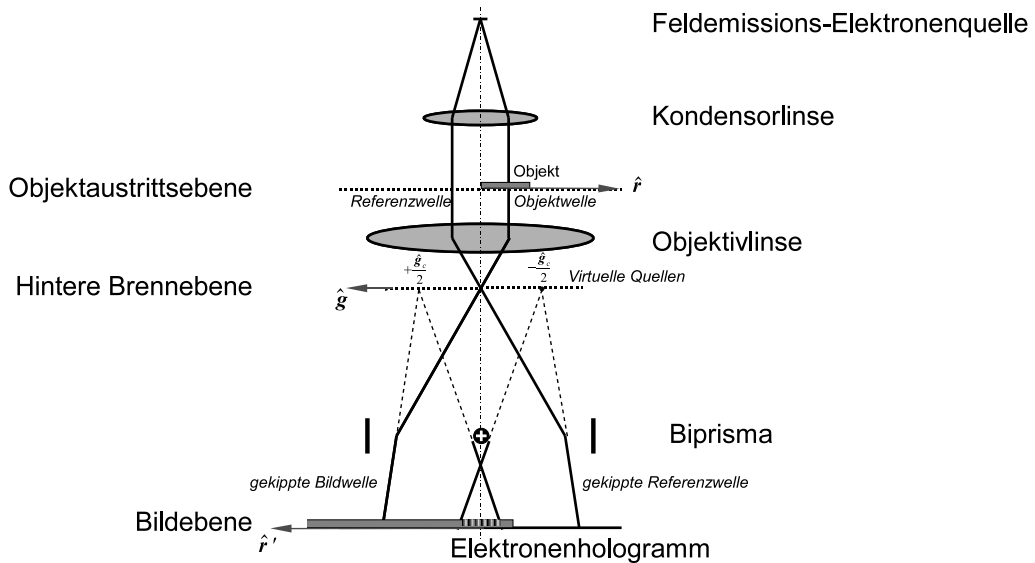


Abbildung 3.2.: Schematischer Strahlengang im Elektronenmikroskop zur Aufzeichnung eines Elektronenhologramms. Im Unterschied zur konventionellen Abbildung gibt es dabei zwei Modifikationen: Erstens wird das Objekt lediglich zur Hälfte in den Strahlengang geschoben, zweitens wird etwas oberhalb der Bildebene ein elektrostatisches Biprisma eingebracht. Dies ermöglicht, Bild- und Referenzwelle in der Bildebene zur Überlagerung zu bringen, und das Elektronenhologramm aufzuzeichnen.



### 3.3. Rekonstruktion der Bildwelle

In einem off-axis Elektronenhologramm (Gl. 3.1) liegt die komplexe Bildwelle zunächst noch indirekt, in der ortsabhängigen Modulation der Interferenzstreifen, vor und wird außerdem von seiner Intensitätsverteilung überlagert. Um die Bildwelle in Amplitude und Phase direkt zu erhalten, muss diese aus dem Hologramm rekonstruiert werden. Dies geschieht heute numerisch im Computer [Franke et al. (1988); Rau et al. (1991); Lehmann und Lichte (2002)]. Degegen wurde früher dieser Schritt auf der optischen Bank realisiert.

Die Rekonstruktion startet mit einer Fouriertransformation, da in der Fouriertransformierten des Elektronenhologramms

$$\begin{aligned}
 I_{hol}^{spec}(\hat{\mathbf{g}}) &= \text{FT} \{I_{hol}(\hat{\mathbf{r}})\} = \\
 &\text{FT} \{I_0 + I_{ima}(\hat{\mathbf{r}})\} \otimes \delta(\hat{\mathbf{g}}) && \text{Zentralband} \\
 &+ \mu(\hat{\mathbf{g}}_c) A_0 \text{FT} \{A_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) \exp(i(\Phi_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) - \gamma(\hat{\mathbf{r}})))\} \otimes \delta(\hat{\mathbf{g}} + \hat{\mathbf{g}}_c) && \text{Seitenband +1} \\
 &+ \mu(\hat{\mathbf{g}}_c) A_0 \text{FT} \{A_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) \exp(-i(\Phi_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) - \gamma(\hat{\mathbf{r}})))\} \otimes \delta(\hat{\mathbf{g}} - \hat{\mathbf{g}}_c) && \text{Seitenband -1}
 \end{aligned} \tag{3.4}$$

das Spektrum der Bildwelle im Seitenband +1 räumlich getrennt vom Zentralband und dem Seitenband -1 vorliegt (s. Abb. 3.3 B). Das Zentralband entspricht der Fouriertransformierten der beiden Intensitäten  $I_{ima}(\hat{\mathbf{r}})$  und  $I_0$  von Bild- und Referenzwelle. Das Seitenband -1 enthält die zur Bildwelle redundante, komplex-konjugierte Information. Zur Rekonstruktion der Bildwelle wird deren Spektrum, d.h. das Seitenband +1, zunächst zentriert (Abb. 3.3 E) und daraufhin mittels einer numerischen Maske bandbegrenzt (Abb. 3.3 D). Für die Zentrierung wird der maximale Wert im entsprechenden Seitenband des Leerhologramms gesucht, da dort die genaue Trägerfrequenz im Vakuum definiert ist. Die numerische Maske sollte an die abgebildete Objektstruktur angepasst sein: in Hochauflösung ( $\sim 0.1 \text{ nm}$ ) eignet sich bei kristallinen Objekten (periodischen Strukturen) ein Filter, das ähnlich einer Kreisblende alle Reflexe (Raumfrequenzen) des Objektspektrums bis zu einer Maximalfrequenz  $g_{max}$  ungedämpft lässt, und alle größeren Raumfrequenzen möglichst abrupt zu Null dämpft ("hartes" Filter). Dagegen ist in mittlerer Auflösung ( $\sim (5-10) \text{ nm}$ ) zur Rekonstruktion großflächiger elektrischer oder magnetischer Phasenschiebungen ein "weiches" Filter vorteilhafter. Mit einem Butterworth-Filter [Russ (2007)]

$$H_{bwf}(\hat{\mathbf{g}}) = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{|\hat{\mathbf{g}}|}{g_0}\right)^{2n}\right]} \tag{3.5}$$

kann man bequem über dessen Ordnung  $n$  einstellen, wie zügig das Filter um den Radius  $|\hat{\mathbf{g}}| = g_0$  (Halbwertsbreite  $g_0$ ) von 1 auf 0 abklingen soll<sup>5</sup>. Nach Multiplikation des Seitenbandes mit einem derartigen Filter und anschließender inverser FT erhält

<sup>5</sup>Kleines  $n$  bedeutet weiches Filter, großes  $n$  hartes Filter.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

man die unnormierte Bildwelle

$$\Psi_{ima}^{reco}(\hat{\mathbf{r}}) = \mu(\hat{\mathbf{g}}_c) A_0 A_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) \exp[i(\Phi_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) + \gamma(\hat{\mathbf{r}}))]. \quad (3.6)$$

Dabei ist die Auflösung der Bildwelle (Abb. 3.3 G) durch das Filter begrenzt.

Zur Korrektur der Verzeichnung  $\gamma(\hat{\mathbf{r}})$  in der Phase und zur Normierung der Amplitude der rekonstruierten Bildwelle (Gl. 3.6) wird das Leerhologramm (Gl. 3.3) mit identischen Parametern wie das Objekthologramm zuvor rekonstruiert. Die aus dem Leerhologramm rekonstruierte objektfreie Leerwelle lautet

$$\Psi_{empty}^{reco}(\hat{\mathbf{r}}) = \mu A_0^2 \exp(i\gamma(\hat{\mathbf{r}})). \quad (3.7)$$

Dividiert man die rekonstruierte Bildwelle 3.6 durch die Leerwelle, so erhält man schließlich die normierte Bildwelle

$$\Psi_{ima}(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{\Psi_{ima}^{reco}(\hat{\mathbf{r}})}{\Psi_{empty}^{reco}(\hat{\mathbf{r}})} = \frac{A_{ima}}{A_0}(\hat{\mathbf{r}}) \exp(i\Phi_{ima}(\hat{\mathbf{r}})). \quad (3.8)$$

Mit der dabei ausgeführten Subtraktion von Bild- und Leerphase wird die Verzeichnung jedoch nur teilweise korrigiert, da deren Komponente längs der Hologrammstreifen dadurch keine Berücksichtigung erfährt. Des Weiteren wirkt sich die raumfrequenzabhängige Verzeichnung im Objekt- (Bildphase) und Vakuumbereich (Leerphase) unterschiedlich aus. Deshalb ist der Einfluss der Verzeichnung nicht als einfache Superposition zur Objektverteilung beschreibbar [Lubk (2010)].

## 3.4. Einfluss der Aberrationen

Die Auflösung der holographisch rekonstruierten Bildwelle wird durch zwei Faktoren begrenzt: Einerseits durch die numerische Apertur zur Separation des Seitenbandes mit dem Radius  $g_{max}$ , andererseits durch die Aberrationen der Objektivlinse in Verbindung mit der partiellen Kohärenz der Beleuchtung (vgl. Abschn. 2.2.3). Während in der atomaren Elektronenholographie der zweite Faktor dominiert, ist dies bei mittlerer Auflösung gerade umgekehrt, wie im Folgenden demonstriert wird.

Ein Elektronenhologramm bei mittlerer Auflösung wird beispielsweise mit 28000-facher Vergrößerung auf der CCD-Kamera aufgezeichnet. Dies entspricht bei einem CCD-Pixel-Abstand von  $24 \mu m$  einem Abtastintervall von  $0.86 nm$  pro Pixel. Bei einem geforderten Streifenabstand von 4 Pixeln bedeutet dies eine Trägerfrequenz von  $g_c = 0.29 nm^{-1}$ . Das Seitenband wird in der Regel mit einer numerischen Maske vom Radius  $g_0 = |\hat{\mathbf{g}}_c|/2 = 0.145 nm^{-1}$  ausgeschnitten. Daraus folgt bei Verwendung eines Butterworth-Filters dritter Ordnung (Gl. 3.5) die in Abbildung 3.4 (C) gezeigte Ausschmierung eines Phasenpunktes im Ortsraum. Die durch die Ausschmierung resultierende Verteilung wird im Folgenden rekonstruiertes Phasenpixel genannt.

Demgegenüber stehen die Abbildungs- und Kohärenzeigenschaften des Philips CM200FEG ST/LL im Lorentzmodus (WTF s. Abb. 2.4). Die durch

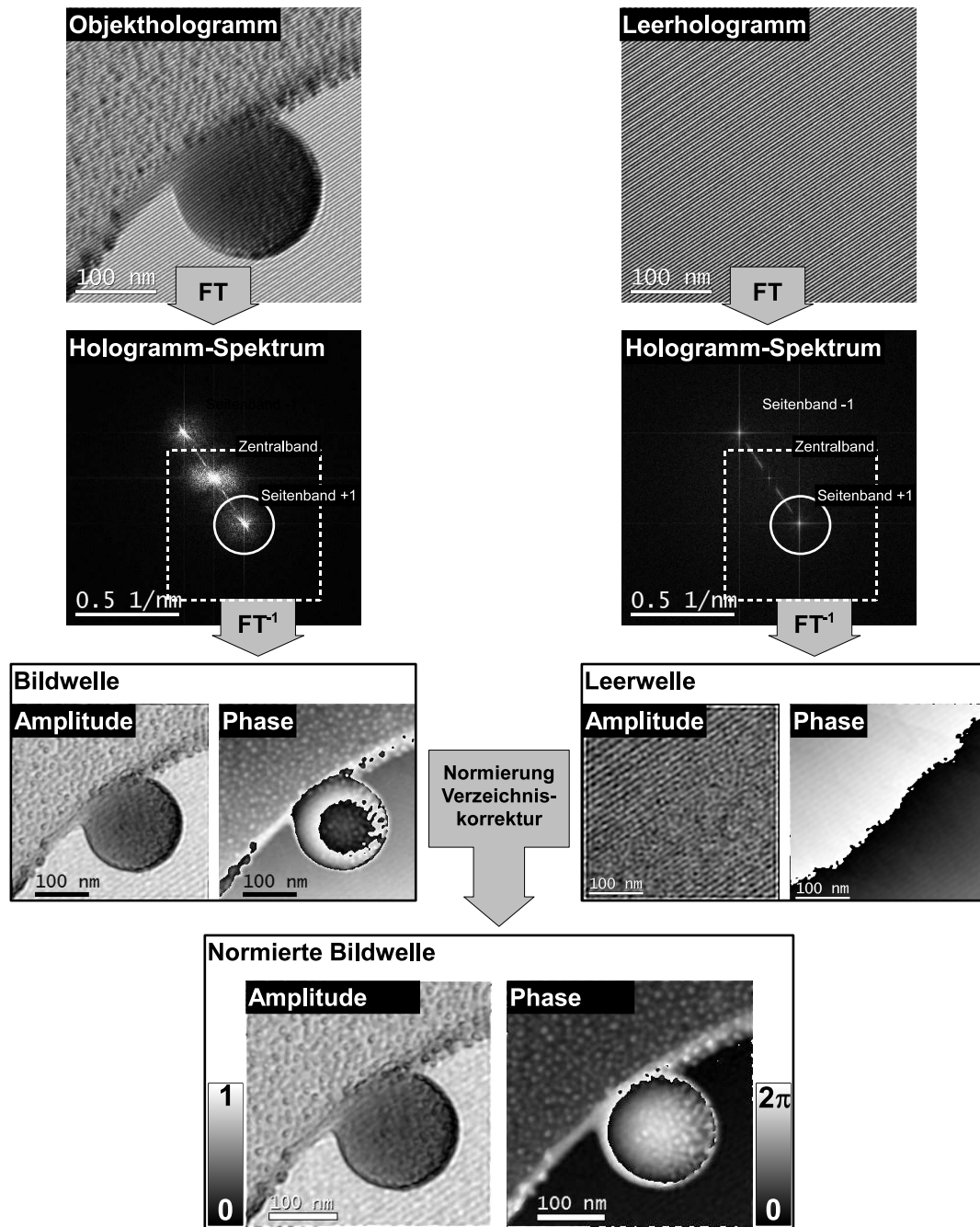


Abbildung 3.3.: Rekonstruktion der normierten Bildwelle aus Objekt- und Leerhologramm am Beispiel einer mit Gold beschatteten Latexkugel. Dazu wird von beiden Hologrammen jeweils das Hologrammspektrum berechnet, das Seitenband +1 zentriert und durch Multiplikation mit einem numerischen Filter ausgeschnitten. Die inverse Fouriertransformation der beiden Seitenbänder liefert jeweils Bild- und Leerwelle. Die Division beider Wellen führt schließlich zur normierten, verzeichnungskorrigierten Bildwelle.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

die Aberrationen der Lorentzlinse gegebenen rekonstruierten Phasenpixel bei voller und partieller Kohärenz sind in Abbildung 3.4 (A und B) gezeigt. Die gleichzeitige Berücksichtigung von numerischer Apertur, Aberrationen und partieller Kohärenz führt schließlich zu Abbildung 3.4 (D). Aus der Ähnlichkeit der rekonstruierten Pixel mit und ohne Berücksichtigung der Aberrationen der Lorentzlinse kann geschlussfolgert werden, dass der Einfluss der numerischen Apertur gegenüber dem der Aberrationen dominiert. Dies wird auch in den in Abbildung 3.4 (E) gezeigten nahezu identischen Linienprofilen von (C) und (D) deutlich.

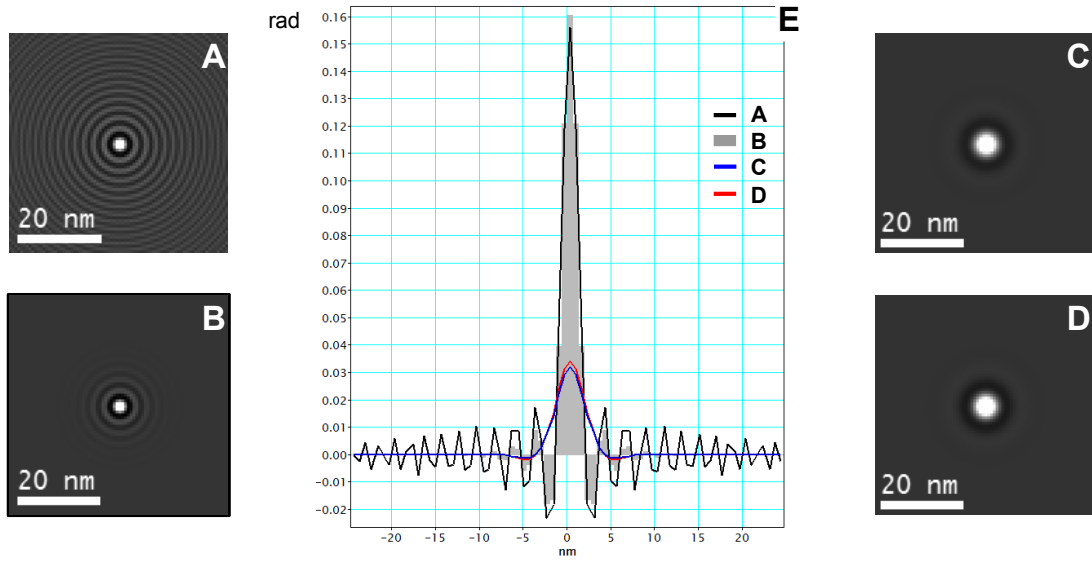


Abbildung 3.4.: Einfluss der Aberrationen auf ein holographisch rekonstruiertes Phasenpixel bei mittlerer Auflösung.

**A:** Rekonstruiertes Phasenpixel bei den Aberrationen  $C_3 = 8 \text{ m}$  und  $C_1 = -3 \mu\text{m}$  (Gaborfokus).

**B:** Rekonstruiertes Phasenpixel wie (A) aber mit Berücksichtigung von partieller Kohärenz ( $C_c = 41 \text{ mm}$ ,  $\Delta E = 0.8 \text{ eV}$ ,  $\vartheta_c = 0.15 \text{ mrad}$ ).

**C:** Rekonstruiertes Phasenpixel nach Butterworth-Filterung ( $n = 3$ ,  $g_0 = 0.145 \text{ nm}^{-1}$ ) ohne Aberrationen.

**D:** Rekonstruiertes Phasenpixel mit den Einflüssen von (B) und (C) zugleich.

**E:** Linienprofile durch das Zentrum der Phasenscheibchen in (A-D).

Diese Überlegungen zeigen, dass Aberrationen bis zu einer Auflösung von ca.  $d_{\min} = 5 \text{ nm}$  (hier:  $d_{\min} = 1/g_0 = 1/0.145 \text{ nm}^{-1} = 6.9 \text{ nm}$ ) eine untergeordnete Rolle spielen. Deshalb wurde auch in dieser Arbeit auf die Aberrationskorrektur verzichtet. Dennoch kann gegebenenfalls die Aberrationskorrektur für einzelne Bildwellen von Vorteil sein, wenn diese mit größeren Bildfehlern (z.B. durch Astigmatismusdrift) behaftet sind. Außerdem könnte die Aberrationskorrektur künftig an Bedeutung gewinnen, wenn Auflösungen bis hin zu  $1 \text{ nm}$  erreicht werden, z.B. durch Benutzung

der ersten Transferlinse des Cs-Korrektors als Pseudo-Lorentzlinse [Snoeck et al. (2006)].

### 3.5. Stochastische Phasenschwankung

Quantenmechanisch entspricht die normierte Intensitätsverteilung  $I_{norm}(\hat{\mathbf{r}})$  mit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I_{norm}(\hat{\mathbf{r}}) d^2r = 1 \quad (3.9)$$

der Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte. Diese gibt die Wahrscheinlichkeit an, ein Elektron innerhalb des Flächenelements  $d^2r$  zu detektieren. Übertragen in die Elektronenmikroskopie bedeutet dies: Die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron innerhalb eines bestimmten CCD-Pixels<sup>6</sup> zu detektieren, ist durch die auf die CCD-Gesamtfläche normierte Intensität in diesem Pixel gegeben. Da die Wahrscheinlichkeit dafür sehr gering ist, kann der zufällige Fehler des Erwartungswertes  $N$  für die Anzahl der in einem Pixel detektierten Elektronen mittels der Poissonstatistik beschrieben werden. Mit dieser Kenntnis lässt sich das Rauschen in einem Elektronenhologramm durch Generierung Poisson-verteilter Zufallszahlen simulieren [Wolf et al. (2004); Wolf (2004)]. Das Rauschen in einem Elektronenhologramm wirkt sich selbstverständlich auch auf die darin kodierte Phase aus. Die Standardabweichung eines rekonstruierten Phasenpixels (Phasenschwankung) ist nach Herleitung von Lenz (1988)

$$\sigma_{\varphi, oh} = \frac{1}{\mu_A} \sqrt{\frac{2}{N_{rec}}}, \quad (3.10)$$

worin  $\mu_A$  der Interferenzstreifenkontrast inklusive der ortsabhängigen Amplitudenmodulation der Bildwelle darstellt, und  $N_{rec}$  die Anzahl der Elektronen im rekonstruierten Pixel bedeutet. Letzere Größe hängt über die Beziehung

$$N_{rec} = \frac{4}{\pi} N_{Hol} \frac{g_{Nyq}^2}{g_0^2} \quad (3.11)$$

vom Radius der numerischen Apertur  $g_0$  zur Separation des Seitenbandes im Fourierraum ab [Wolf (2004)].  $g_{Nyq}$  steht für die Nyquistfrequenz des digitalisierten Hologramms und  $N_{Hol}$  die Anzahl der detektierten Elektronen in einem Hologrammpixel<sup>7</sup>.

Die Normierung durch die Leerwelle (Gl. 3.8), welche aus dem Leerhologramm rekonstruiert wurde, liefert einen zusätzlichen Rauschbeitrag  $\sigma_{\varphi, eh}$ . Da das Rauschen in Objekt- und Leerhologramm statistisch unabhängig voneinander ist, gilt für die

<sup>6</sup>Annahme der idealen CCD-Kamera mit Ansprechvermögen=1.

<sup>7</sup>Bei Benutzung einer sinc-Funktion (Sinus cardinalis) zur Filterung des Seitenbandes, wie später in Abschnitt 5.3.2 beschrieben, fällt der Faktor  $4/\pi$  weg. Außerdem ist in diesem Fall  $g_0$  durch die erste Nullstelle der sinc-Funktion definiert.

Standardabweichung  $\sigma_\varphi$  der Phase der normierten Objektwelle (Gl. 3.8)

$$\sigma_\varphi = \sqrt{\sigma_{\varphi,oh}^2 + \sigma_{\varphi,eh}^2}. \quad (3.12)$$

### 3.6. Stochastische Potentialschwankung und optimale Dicke für 2D-Abbildungen von Potentialen

Die quantitative zweidimensionale Abbildung elektrostatischer Potentiale wird zum Beispiel zur Bestimmung von

- Mittleren Inneren Potentialen (MIP) [Gajdardziska-Josifovska et al. (1993); Li (1999); Kruse et al. (2006)],
- Diffusionsspannungen in dotierten Halbleitern [Rau et al. (1999, 2000); Li (2003); Twitchett et al. (2005); Lenk (2008)] oder auch
- Potentialbarrieren an geladenen Versetzungen [Müller et al. (2006)] benutzt.

Sie beruht auf der Idee, aus der holographisch rekonstruierten Phase und mittels Gl. (2.6) ein in Projektionsrichtung  $z$  gemitteltes Potential

$$\bar{V}(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{1}{t(\hat{\mathbf{r}})} \int_L V(\mathbf{r}) dz = \frac{\varphi(\hat{\mathbf{r}})}{C_E t(\hat{\mathbf{r}})} \quad (3.13)$$

bei bekannter Dicke  $t$  zu bestimmen. Die Dicke kann mittels verschiedener Methoden bestimmt werden, z.B.

- aus bekannter Geometrie eines entlang einer bestimmten kristallographischen Ebene gebrochenen Keils Gajdardziska-Josifovska et al. (1993); Li (1999),
- mittels Konvergenter Elektronenbeugung (CBED) [Kelly et al. (1975)] oder
- aus der Beziehung zwischen bekannter mittlerer freier Weglänge für (in-)elastische Streuung und holographisch rekonstruierter Amplitude (Amplitudenkontrast, s. Abschn. 2.1.4).

Die stochastische Potentialschwankung (Standardabweichung) des gemittelten Potentials  $\bar{V}$  infolge des Phasenrauschens berechnet sich aus der Phasenschwankung  $\sigma_\varphi$  zu<sup>8</sup>

$$\sigma_V = \frac{\sigma_\varphi}{t C_E}. \quad (3.14)$$

---

<sup>8</sup>Eigentlich müsste dabei noch ein systematischer Fehler  $\Delta t$  bei der Bestimmung der Dicke berücksichtigt werden. Dieser als unabhängig von der Dicke angenommene Beitrag spielt jedoch für die folgenden Überlegungen keine Rolle.

Mit der Phasenschwankung  $\sigma_\varphi$  aus Gl. 3.10 ergibt sich

$$\sigma_V = \left( t C_E \mu_A \sqrt{N_{rec}/2} \right)^{-1}. \quad (3.15)$$

Diese Relation verdeutlicht, dass die Potentialschwankung verringert werden kann, indem sowohl die Elektronendosis pro rekonstruiertem Pixel  $N_{rec}$  als auch der Streifenkontrast  $\mu$  erhöht wird. Beide Größen nehmen jedoch mit der Dicke  $t$  exponentiell ab, d.h.

$$N_{rec} = N_{0,rec} \exp \left( -\frac{t}{\lambda_{el}} \right) \quad (3.16)$$

und

$$\mu_A = \mu \exp \left( -\frac{t}{2\lambda_{inel}} \right). \quad (3.17)$$

$N_{0,rec}$  und  $\mu$  sind Elektronendosis und Streifenkontrast im Vakuum, sowie  $\lambda_{el}$  und  $\lambda_{inel}$  die mittleren freien Weglängen für elastische und inelastische Streuung (vgl. Gl. 4.11 und Gl. 2.13). Die beiden Weglängen lassen sich durch das harmonische Mittel zu einer mittleren freien Weglänge  $\lambda$

$$\frac{1}{\lambda} = \frac{1}{2\lambda_{el}} + \frac{1}{2\lambda_{inel}} \quad (3.18)$$

zusammenfassen. Damit folgt schließlich für die Potentialschwankung aus Gl. 3.15

$$\sigma_V(t) = \frac{1}{C_E \mu} \sqrt{\frac{2}{N_{0,rec}}} \frac{1}{t} \exp \left( \frac{t}{\lambda} \right). \quad (3.19)$$

Diese Funktion besitzt ein Minimum bei der sogenannten optimalen Probendicke

$$t_{opt} = \lambda = \frac{2\lambda_{el}\lambda_{inel}}{\lambda_{el} + \lambda_{inel}}. \quad (3.20)$$

Für eine Abschätzung der Potentialschwankung in Abhängigkeit von der Dicke am Beispiel von Silizium werden die Werte  $N_{0,rec} = 32000^9$ ,  $\lambda_{el} = 200 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{inel} = 200 \text{ nm}$ ,  $\mu = 20\%$  in die Beziehung 5.17 eingesetzt. Dabei werden die beiden Werte für  $\lambda_{inel}$  und  $\lambda_{el}$  bestimmt, indem zunächst aus experimentellen Amplituden- und Intensitätsbildern von Silizium mittels der beiden Gleichungen (2.13) und (4.11), jeweils die  $t(\hat{\mathbf{r}})/\lambda_{el}$ - und  $t(\hat{\mathbf{r}})/\lambda_{inel}$ -Verteilungen berechnet werden. Um daraus die mittleren freien Weglängen zu erhalten, muss die Dickenverteilung  $t(\hat{\mathbf{r}})$  bekannt sein. Diese wird aus der entsprechenden Projektion eines Tomogramms von Silizium ermittelt (Abschn. 6.3.3). Damit ergibt sich schlussendlich ein Wert von  $\lambda_{inel} = 200 \text{ nm}$ , der sehr gut mit dem von Lee et al. (2002) mittels EELS (*Electron Energy Loss Spectroscopy*) gefundenen Wert übereinstimmt.

---

<sup>9</sup>Die Elektronendosis pro rekonstruiertem Pixel  $N_{0,rec} = 32000$  berechnet sich zu  $N_{0,rec} = N_{hol} s_{hol}^2$  mit der Dosis pro Hologrammpixel  $N_{hol} = 2000$  und dem Streifenabstand  $s_{hol} = 4 \text{ px}$ .

### 3. Off-axis Elektronenholographie

Abbildung 3.5 zeigt den Verlauf der Potentialschwankung  $\sigma_V(t)$ , welcher bei der optimalen Dicke von  $t_{opt} = 200 \text{ nm}$  ein Minimum von  $0.08 \text{ V}$  aufweist.

Dieser Wert ist vertretbar, will man bspw. Diffusionspotentiale von ca.  $1 \text{ V}$  in dotiertem Silizium messen. Dagegen ist er relativ groß für die Messung von Potentialsprüngen an ferroelektrischen Domänengrenzen, welche, wie aus DFT Rechnungen bekannt, nur ca.  $(0.2 - 0.3) \text{ V}$  betragen [Lubk (2010)]. Erschwerend kommt hinzu, dass nur bei sehr genauer lokaler Kenntnis der Probendicke ein Potentialsprung verlässlich detektiert werden kann.

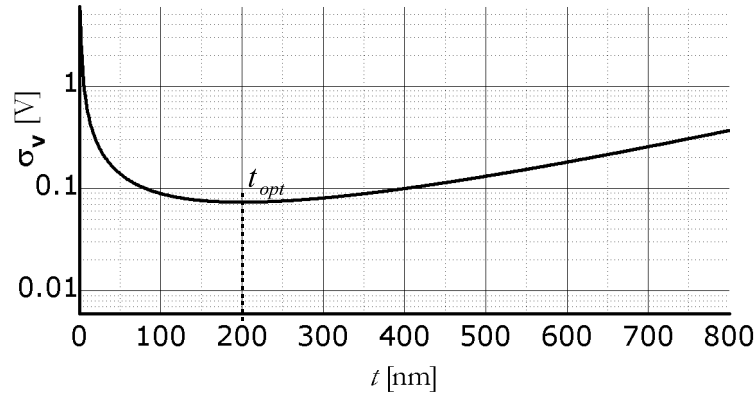


Abbildung 3.5.: Stochastische Potentialschwankung  $\sigma_V$  als Funktion der Objektdicke  $t$ .  $\sigma_V$  bezieht sich auf das aus der Phase bestimmte und über die Objektdicke in  $z$ -Richtung gemittelte 2D-Potential. Der Graph zeigt den in Gl. (5.17) formulierten Zusammenhang. Darin wurden folgende Werte eingesetzt:  $N_{0,rec} = 32000$ ,  $\lambda_{el} = 200 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{inel} = 200 \text{ nm}$ ,  $\mu = 20\%$ .

## 3.7. Phase Unwrapping

Die in mittlerer Auflösung üblicherweise untersuchten Proben besitzen Dicken im Bereich von ca.  $50 - 300 \text{ nm}$ . Proben solcher Dicke führen zu Phasenschiebungen  $\varphi_u(\hat{\mathbf{r}})$  in der Objektaustrittswelle, die nach Gl. 2.6 ohne Weiteres mehrere ganzzahlige Vielfache von  $2\pi$  überschreiten können. Jedoch ist die Phasenschiebung, welche sich aus der rekonstruierten Objektaustrittswelle berechnet, nur innerhalb des Intervalls  $(-\pi, \pi]$  eindeutig definiert und trägt deshalb die Bezeichnung *wrapped phase*  $\varphi_w(\hat{\mathbf{r}})$  (engl.: *wrapped* = gepackt, eingewickelt)<sup>10</sup>.

Dennoch gibt es die Möglichkeit aus der gewrappten Phase durch sogenannte *Phase-Unwrapping* Algorithmen die ungewrappte Phase zu berechnen. Die dadurch

<sup>10</sup>Um in diesem Kontext die Klarheit und den Bezug zur ausschließlich englischsprachigen Literatur zu wahren, werden im Folgenden die Begriffe 'wrappen', 'unwrappen', 'gewrappte Phase' und 'ungewrappte Phase', verwendet.



ermittelte Gesamtphasenschiebung steht in direktem Zusammenhang mit dem Objektpotential, und ist daher für diese Messungen von essentieller Bedeutung.

Der Zusammenhang zwischen ungewrappter  $\varphi_u(\hat{\mathbf{r}})$  und gewappter Phase  $\varphi_w(\hat{\mathbf{r}})$  der Welle ist durch die einfache Relation

$$\varphi_u(\hat{\mathbf{r}}) = \varphi_w(\hat{\mathbf{r}}) + 2\pi s(\hat{\mathbf{r}}), \quad (3.21)$$

gegeben, wobei die ganzzahligen Werte  $s(\hat{\mathbf{r}})$  die Anzahl der Perioden repräsentieren. Somit lässt sich das Phase Unwrapping auf die Bestimmung der ganzzahligen Verteilung  $s(\hat{\mathbf{r}})$  reduzieren.

Das Problem des Phase Unwrappings ist kein spezifisches der Elektronenholographie, sondern tritt bei allen interferometrischen Messungen auf: zum Beispiel in der Medizin, Geographie oder auch zur zivilen und militärischen Bodenaufklärung mittels SAR ('Synthetic Aperture Radar'). Einen sehr detaillierten und umfassenden Überblick zu diesem Thema bietet das Buch: "Two-Dimensional Phase Unwrapping" von Ghiglia und Pritt (1998). Zwei der darin beschriebenen Algorithmen sind der *Branch-cut Algorithm* von R. Goldstein [Goldstein et al. (1988)] und der *Minimum Discontinuity Approach* von T.J. Flynn [Flynn (1997)].

Da beide Methoden in dieser Arbeit über einen von Perkes (2002) implementierten Algorithmus innerhalb der Bildverarbeitungssoftware DigitalMicrograph(TM) (Gatan Inc., Pleasanton, USA) sehr oft benutzt wurden, erfolgt eine Erläuterung dieser in den Abschnitten 3.7.2 und 3.7.3. Zuvor wird jedoch der eindimensionale Fall des Phase Unwrappings in Abschnitt 3.7.1 betrachtet. Abschließend werden anhand eines Beispiels die Resultate der beiden oben erwähnten Algorithmen verglichen, sowie generelle Folgerungen für die erfolgreiche Durchführung des Phase Unwrappings diskutiert (Abschn. 3.7.4).

#### 3.7.1. Eindimensionales Phase Unwrapping

Im eindimensionalen Fall lässt sich für jedem Abtastpunkt  $m = x/d$  (Ortskoordinate  $x$ , Abtastintervall  $d$ ) der gewappten Phase  $\varphi_w(m)$  die ungewappte Phase  $\varphi_u(m)$  rekursiv durch die Formel

$$\varphi_u(m) = \varphi_u(0) + \sum_{l=0}^{m-1} \mathcal{W}\{\varphi_w(l+1) - \varphi_w(l)\} \quad (3.22)$$

berechnen, worin das Symbol  $\mathcal{W}$  für den Wrapping Operator

$$\mathcal{W}(\varphi_u) := \begin{cases} \arctan[\mathcal{I}(e^{i\varphi_u})/\mathcal{R}(e^{i\varphi_u})] & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) > 0 \\ \arctan[\mathcal{I}(e^{i\varphi_u})/\mathcal{R}(e^{i\varphi_u})] + \pi & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) < 0 \text{ und } \mathcal{I}(e^{i\varphi_u}) \geq 0 \\ \arctan[\mathcal{I}(e^{i\varphi_u})/\mathcal{R}(e^{i\varphi_u})] - \pi & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) < 0 \text{ und } \mathcal{I}(e^{i\varphi_u}) < 0 \\ \pi/2 & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) = 0 \text{ und } \mathcal{I}(e^{i\varphi_u}) > 0 \\ -\pi/2 & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) = 0 \text{ und } \mathcal{I}(e^{i\varphi_u}) < 0 \\ 0 & \text{für } \mathcal{R}(e^{i\varphi_u}) = 0 \text{ und } \mathcal{I}(e^{i\varphi_u}) = 0 \end{cases} \quad (3.23)$$

steht. Dieser begrenzt die Phase auf das Intervall  $(-\pi, +\pi]$ . Darin bedeuten  $\mathcal{I}$  und  $\mathcal{R}$  jeweils Imaginär- und Realteil einer komplexen Größe. Diese einfache Form des Phase Unwrappings wurde das erste Mal von Itoh (1982) Itoh vorgestellt und gliedert sich in folgende Schritte: die gewrappte Phase wird zu Beginn numerisch differenziert, danach der Wrapping Operation unterzogen und schließlich von einem Startpunkt  $\varphi_u(0)$  beginnend wieder numerisch integriert.

Jedoch können bei experimentellen Phasenverteilungen zwei Faktoren die erfolgreiche Durchführung des Phase Unwrapping mit Ithos Methode verhindern. Diese sind

1. Rauschen und
2. Unterabtastung, d.h. für zwei benachbarte Pixel (Abtastpunkte) gilt

$$|\varphi_u(m+1) - \varphi_u(m)| \geq \pi. \quad (3.24)$$

Abbildung 3.6 verdeutlicht dies am Beispiel einer zick-zack-förmigen Phasenverteilung<sup>11</sup>.

Ohne die Probleme von Rauschen und Unterabtastung ließen sich 2D-Phasenverteilungen durch zeilenweise Anwendung der 1D-Methode unwrappen. In der Regel besitzt aber eine experimentelle gewrappte Phase unterabgetaste bzw. sehr verrauschte Bereiche. Daher werden Algorithmen benötigt, welche das Phase Unwrapping unter Berücksichtigung der zweidimensionalen Umgebung behandeln. Wie oben bereits erwähnt, leisten dies zum Beispiel die Algorithmen von Goldstein und Flynn, deren Prinzipien im Folgenden kurz illustriert werden sollen.

### 3.7.2. Goldsteins “Branch-Cut Algorithm”

Die Idee in Goldsteins “Branch-Cut-Algorithmus” [Goldstein et al. (1988); Ghiglia und Pritt (1998)] ist, die Problemstellen (Residuen) zu identifizieren, und diese mithilfe von sogenannten *branch-cuts* beim nachfolgenden Unwrapping des Phasenbildes zu berücksichtigen. Im Wesentlichen beinhaltet der Algorithmus die folgenden Schritte:

- (A) Identifizierung der Residuen,

<sup>11</sup>Eine ähnliche Phasenverteilung könnte bspw. die Phase einer magnetischen Domänenstruktur aufweisen.

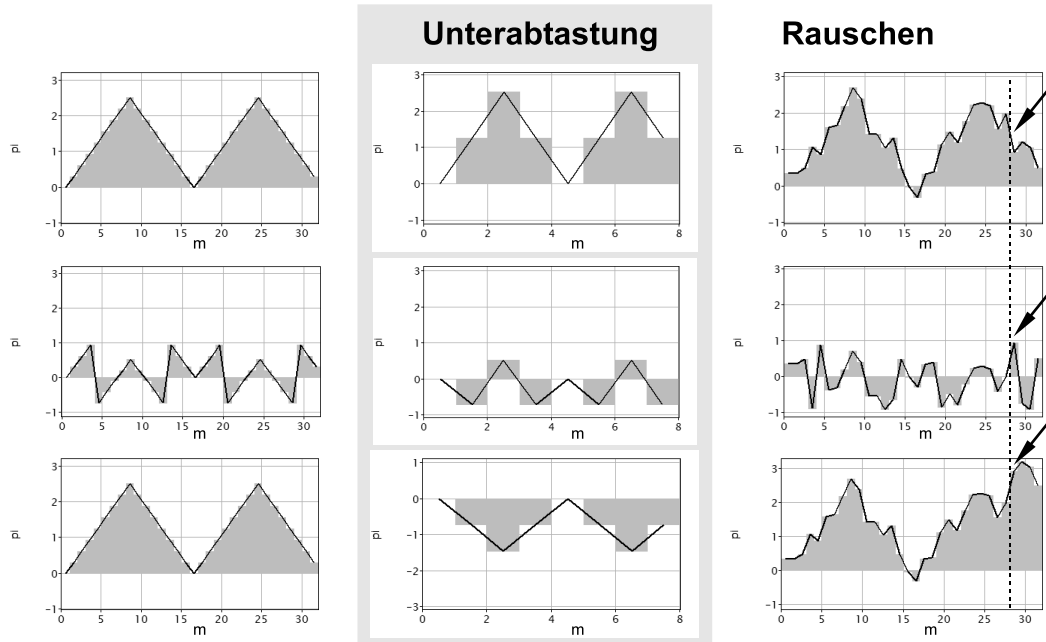


Abbildung 3.6.: Einfluss von Unterabtastung und Rauschen auf das Phase-Unwrapping. Die grau ausgefüllte Verteilung entspricht den Abtastpunkten der kontinuierlichen Verteilung (schwarze Linie). Aus den drei ursprünglichen Phasen (oben) werden zunächst die gewrappten Phasen (mitte), und daraus wieder mittels Gl. (3.22) die ungewrappten Phasen (unten) bestimmt.

**Unterabtastung:** Die gewrappte Phase (mitte) lässt sich nicht mehr korrekt unwrappen (unten), da in der ursprünglichen Phase der Betrag der Differenz zweier benachbarter Pixel  $\pi$  übersteigt (Gl. 3.24).

**Rauschen:** Die gewrappte Phase (mitte) lässt sich ab der Stelle, welche durch den Pfeil markiert wurde, nicht mehr korrekt unwrappen (unten), da an dieser Stelle in der ursprünglichen Phase der Betrag der Differenz zweier benachbarter Pixel  $\pi$  übersteigt (Gl. 3.24).

- (B) Ausbalancieren der Residuen durch Generierung von branch-cuts,
- (C) 1D-Phase-Unwrapping entlang Pfaden, ohne dabei die branch-cuts zu berühren bzw. zu schneiden.

Die Identifizierung der Residuen erfolgt wie in Abbildung 3.7 (A) veranschaulicht und beschrieben. Die dabei gefundenen Residuen werden danach ausbalanciert, d.h. die nächstliegenden positiven und negativen Residuen werden miteinander paarweise verbunden (s. Abb. 3.7 B). Diese Verbindungen bezeichnet man als branch-cuts, welche im letzten Schritt des Algorithmus' von Bedeutung sind. Den Elementarprozess des letzten Schrittes stellt das im vorherigen Abschnitt besprochene 1D-Phase-Unwrapping entlang von Pfaden dar. Um sicherzustellen, dass die Pfade die branch-cuts nicht kreuzen oder berühren, werden dabei Flutfüllungs-Algorithmen (*flood-fill algorithms*) verwendet.

#### 3.7.3. Flynn's "(Weighted) Minimum Discontinuity Approach": (W)MDA

In dem von Flynn (1997) eingeführten Phase Unwrapping Algorithmus wird versucht, Diskontinuitäten, d.h. zwischen zwei benachbarten Pixeln auftretende Phasensprünge größer  $\pi$ , im Phasenbild zu minimieren. Eine Diskontinuität wird über die Höhe eines Phasensprunges in Einheiten von Perioden  $2\pi$ , sogenannte *jump counts*, definiert. Ein jump count in horizontaler Richtung der  $M \times N$  Pixel großen diskretisierten Phasenverteilung berechnet sich zu

$$h(m, n) = \text{Int} \left( \frac{\varphi_u(m, n) - \varphi_u(m-1, n)}{2\pi} \right), \quad (3.25)$$

wobei  $m = 1, 2, \dots, M-1$  und  $n = 0, 1, \dots, N-1$ . Dementsprechend berechnet sich ein jump count in vertikaler Richtung zu

$$v(m, n) = \text{Int} \left( \frac{\varphi_u(m, n) - \varphi_u(m, n-1)}{2\pi} \right), \quad (3.26)$$

wobei  $m = 0, 1, \dots, M-1$  und  $n = 1, 2, \dots, N-1$ . Die Funktion  $\text{Int}()$  rundet dabei die Ausdrücke in den Klammern auf ganzzahlige Werte<sup>12</sup>. Die jump counts in horizontaler und vertikaler Richtung  $h_w(m, n)$  und  $v_w(m, n)$  in einer gewrappten Phase können zunächst nur die Werte -1, 0 und +1 betragen. Parallel dazu werden ganzzahlige *wrap counts*  $c(m, n)$  eingeführt. Diese geben an, um das Wievielfache die gewrappte Phase  $\varphi_w$  in Einheiten von  $2\pi$  geschoben werden muss, damit der Zusammenhang

$$\varphi_u(m, n) = \varphi_w(m, n) + 2\pi c(m, n) \quad (3.27)$$

zwischen ungewrappte Phase  $\varphi_u$  und  $\varphi_w$  gilt. Mit der Kenntnis des Wertes  $c(0, 0)$  für die wrap counts kann rekursiv über die Vorschrift

<sup>12</sup>Wenn Nachkommastelle  $< 0.5$ , dann abrunden, sonst aufrunden.

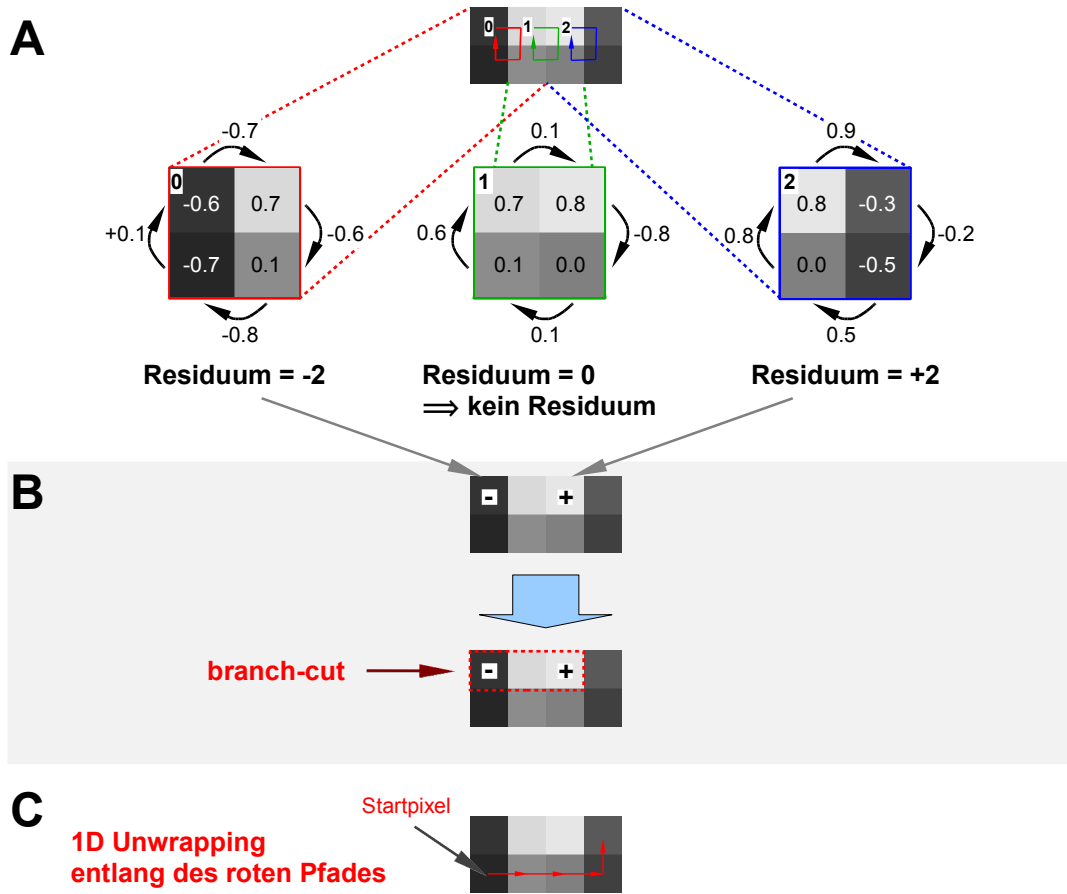


Abbildung 3.7.: Veranschaulichung der Schritte im Goldstein Algorithmus.

**A:** Berechnung der Residuen. Für die Pixel 0, 1, 2 bildet man entlang der geschlossenen Pfade die Differenzen zwischen Nachbarpixeln (Pixel 0 obere Zeile:  $0.7\pi - (-0.6\pi) = 1.3\pi$ ), begrenzt diese auf den Wertebereich  $(-\pi, \pi]$  (Pixel 0 obere Zeile:  $1.3\pi \rightarrow -0.7\pi$ ), und summiert die Ergebnisse entlang der Pfade wieder (Pixel 0:  $(-0.7 - 0.6 - 0.8 + 0.1)\pi = -2\pi$ ). Die vergrößerten Bereiche zeigen die Pixelwerte in Einheiten von  $\pi$ . Die Werte neben den Pfeilen bedeuten die "gewrappten" Differenzen zwischen den Nachbarpixeln. Die Summe dieser Werte liefert das Residuum.

**B:** Generierung des branch-cuts durch Verbinden von negativem mit positivem Residuum.

**C:** 1D-Phase-Unwrapping entlang des roten Pfades um den branch-cut.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

$$c(m, 0) = c(m - 1, 0) - h_w(m, 0) \quad (3.28)$$

die Zeile 0, und aus dieser die restlichen Werte durch

$$c(m, n) = c(m, n - 1) - v_w(m, n) \quad (3.29)$$

berechnet werden. Aus der so bestimmten Verteilung  $c(m, n)$  ergibt sich mittels Gl. (3.27) die vorläufige ungewrappte Phase  $\varphi_u^0(m, n)$ . Zur Bewertung der Qualität von  $\varphi_u^0(m, n)$  führt Flynn die gewichtete Summe aller in der Phase verbliebenen Diskontinuitäten

$$E_0(c; \varphi_u) = \sum w_{mn}^h |h(m, n)| + \sum w_{mn}^v |v(m, n)| \quad (3.30)$$

ein. Darin sind  $h(m, n)$  und  $v(m, n)$  die in Gl. 3.25 und Gl. 3.26 eingeführten horizontalen und vertikalen jump counts, sowie  $w_{mn}^h$  und  $w_{mn}^v$  die zugehörigen Gewichtungen. Die Gewichtungen haben den Zweck, die Diskontinuitäten in Bereiche geringer Qualität zu leiten. Dazu benötigt man eine Qualitätsinformation über die Phase, welche in der EH mit der rekonstruierten Amplitude zur Verfügung steht. Geringe Amplitudenwerte bedeuten, dass das Rauschen der entsprechenden Phasenwerte höher ist. Somit sind die Phasenwerte in diesen Bereichen weniger gut definiert, und es ist durchaus wahrscheinlich, dass dort eher Diskontinuitäten infolge von Rauschen auftreten.

Die Idee des Ansatzes der Gewichteten Minimalen Diskontinuitäten (*Weighted Minimum Discontinuity Approach*: WMDA) von Flynn ist, nach Anwendung eines iterativen Optimierungsalgorithmus' das Kriterium  $E_0(c; \varphi_u) \stackrel{!}{=} \min.$  zu erfüllen. Da die Erläuterung solch eines Optimierungsalgorithmus' ein zu tiefes Eindringen in die Informatik erfordert (z.B. Graphentheorie), soll an dieser Stelle lediglich auf die Beschreibungen in Flynn (1997) sowie Ghiglia und Pritt (1998) verwiesen werden.

#### 3.7.4. Anwendungsbeispiel

Nachdem in den vorangegangenen Kapiteln die beiden Algorithmen von Goldstein und Flynn vorgestellt wurden, soll jetzt ihre Anwendbarkeit am Beispiel eines experimentellen, mittels off-axis EH rekonstruierten Phasenbildes demonstriert werden. Dabei soll auch die Abhängigkeit vom Radius der numerischen Maske gezeigt werden, welche als Filter zur Separation des Seitenbandes dient. Dies ist vor allem im Hinblick auf die in Abschnitt 3.7.1 erwähnten Probleme von Unterabtastung und Rauschen interessant.

Je kleiner der Radius  $g_{max}$  der Seitenbandmaske ist, desto geringer ist die Auflösung  $d_{hol}$  der rekonstruierten Objektwelle, d.h. desto größer ist das rekonstruierte Pixel. Doch auch die numerische Auflösung  $d_{num} = 1/2g_{Nyq}$  (digitales Abtastintervall) der Objektwelle hat Einfluss auf das Ergebnis des Phase Unwrappings, wie das folgende Beispiel verdeutlichen wird. Zudem ist es für Flynn's WMDA von Vorteil, statt nur der Phase, die gesamte Objektwelle für das Phase Unwrapping zu benutzen. In diesem Fall kann die Amplitude zur Gewichtung der

Diskontinuitäten verwendet werden.

In Abbildung 3.8 werden die Unwrapping Ergebnisse eines Phasenbildes einer mit Gold beschatteten Latexkugel verglichen. Die Phase (A) wurde einerseits mit einer kleineren Seitenbandmaske rekonstruiert als die Phase (E), und andererseits weniger fein abgetastet. Die geringere Auflösung in Phase (A) führt dazu, dass der auf der rechten Seite der Latexkugel tatsächlich vorhandene Phasensprung nicht mehr abgetastet wird.

Folglich kommt es zu Problemen beim Phase Unwrapping: Durch beide Algorithmen werden im Vakuumbereich der ungewrappten Phase zwei artifizielle Phasensprünge eingeführt (Goldstein: Abb. 3.8 (B), Flynn: Abb. 3.8 (C)). Erst durch Berücksichtigung der Amplitude zur Gewichtung werden zumindest die Phasensprünge im Vakuum nach Anwendung von Flynns WMDA beseitigt (Abb. 3.8 D). Jedoch ist in diesem Fall das Ergebnis in der Latexkugel wenig befriedigend. Infolge der Gewichtung durch die Amplitude wurden die Diskontinuitäten in die Latexkugel “geleitet” (Amplitude geringer, Phase stärker verrauscht).

Im Vergleich dazu treten beim Unwrapping der Phase mit höherer Auflösung (E) lediglich kleinere Artefakte an den Rändern der Latexkugel auf. Dies unterstreichen die zu (B-D) entsprechenden Ergebnisse (F-G).

Dieses Beispiel steht exemplarisch für die Erfahrungen, die auch während der gesamten Arbeit gemacht wurden. Daraus ergeben sich folgende generelle Hinweise für das Phase Unwrapping:

- Radius des numerischen Filters zur Separation des Seitenbandes so groß wie möglich  $\Rightarrow$  holographische Auflösung so hoch wie möglich.
- Pixelzahl der rekonstruierten Objektwelle so hoch wie möglich  $\Rightarrow$  numerische Abtastung so hoch wie möglich.
- Gegebenfalls Objektphase und Leerphase getrennt unwrappen, da Einzelbilder geringeres Rauschen als deren Differenz besitzen.
- Flynns Algorithmus auf Objektwelle statt auf Phase anwenden  $\Rightarrow$  Gewichtung durch Amplitude.
- Hybrid Algorithmus, eine Kombination der Algorithmen von Goldstein und Flynn benutzen.

## 3.8. Zusammenfassung

Neben den obligatorischen Themen eines Einführungskapitels zur off-axis Elektronenholographie: Grundprinzip, Aufnahme des Elektronenhogramms, Rekonstruktion der komplexen Bildwelle, wurden auch spezielle Aspekte der EH diskutiert. Die Frage, ob Bildfehlerkorrektur der rekonstruierten Bildwelle in mittlerer Auflösung (bis ca.  $5\text{ nm}$ ) generell notwendig ist, wurde hier mit “nein” beantwortet.

### 3. Off-axis Elektronenholographie

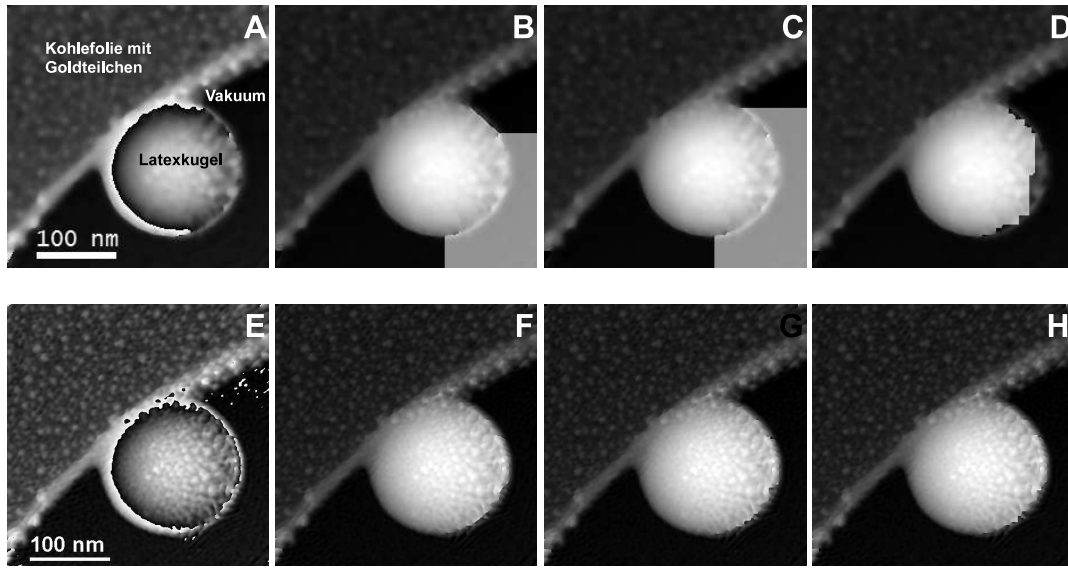


Abbildung 3.8.: 2D-Unwrapping des Phasenbildes einer mit Gold beschatteten Latexkugel.

**A/E:** Rekonstruierte Phase mit (A) niedrigerer und (E) höherer Auflösung.

Holographische Auflösung in (A):  $d_{hol} = 15 \text{ nm}$  und (E)  $d_{hol} = 6.1 \text{ nm}$ .

Numerische Auflösung in (A):  $d_{num} = 1.4 \text{ nm}$  und (E)  $d_{num} = 0.7 \text{ nm}$ .

**B/F:** Unwrapping der Phase (A)/(E) mit Goldsteins Algorithmus.

**C/G:** Unwrapping der Phase (A)/(E) mit Flynn's Algorithmus.

**D/H:** Unwrapping der Objektwelle (A)/(E) mit Flynn's Algorithmus.

Zur quantitativen Auswertung der rekonstruierten Phasenverteilung ist die Bestimmung der durch Quantenrauschen hervorgerufenen stochastischen Schwankung des Phasenwertes in einem rekonstruierten Pixel von Bedeutung. Daraus folgt direkt die Betrachtung der stochastischen Potentialschwankung  $\sigma_V$  des 2D-Potentials, welches aus der Phase bei bekannter Objektdicke  $t$  bestimmt werden kann. Dazu wurde die schon prinzipiell bekannte Abhängigkeit  $\sigma_V(t)$  etwas detaillierter als bisher beschrieben (Berücksichtigung der elastischen Dämpfung) und am Beispiel von Silizium verifiziert. Diese Berechnung liefert eine minimale rauschbedingte Potentialschwankung von  $0.08 \text{ V}$  bei einer optimalen Dicke von  $200 \text{ nm}$ .

Abschließend wurden die aus anderen Gebieten in die EH importierten Algorithmen von Goldstein und Flynn zum 2D-Phase-Unwrapping von Phasenbildern in ihren Prinzipien vorgestellt. Um mit diesen Algorithmen ein möglichst erfolgreiches Unwrapping der Phase durchzuführen, muss die holographische und numerische Auflösung so hoch wie möglich gewählt werden.



## 4. Elektronentomographie

Als Tomographie (griech.: “Tomo” = Schicht, Schnitt, “graphie” = Aufzeichnung) bezeichnet man die Rekonstruktion einer  $n$ -dimensionalen Verteilung (Objekteigenschaft) aus deren  $(n - 1)$ -dimensionalen Projektionen. Die rekonstruierte  $n$ -dimensionale Verteilung wird auch Tomogramm (“Schnittabbildung”) genannt.

Die mathematischen Grundlagen, d.h. die Berechnung einer Funktion aus seinen Linien-Integralwerten, legte schon 1917 Jahren der Mathematiker Johann Radon<sup>1</sup> [Radon (1917)]. Ihm zu Ehren wird deshalb der Raum der Projektionen als Radonraum und die zugehörige Transformation vom Ortsraum in den Radonraum als Radontransformation bezeichnet. Da die Menge aller Projektionen eines Objektes mathematisch als dessen Radontransformierte beschrieben werden kann, stellt sich das Problem der 3D-Rekonstruktion des Objektes als Inverse Radontransformation dar.

Die Entwicklung der Tomographie 1963 erfolgte zuerst auf dem Gebiet der Radiologie, vor allem für medizinische Anwendungen [Cormack (1963, 1964)]. Fünf Jahre später wurde die Tomographie auch für die Elektronenmikroskopie entdeckt, wie gleich drei wegweisende Pionierarbeiten zur Elektronentomographie (ET) im Jahr 1968 belegen: De Rosier und Klug (1968) formulierten generelle tomographische Prinzipien der Objektrekonstruktion aus dessen TEM-Abbildungen (z.B. Projektions-Schnitt-Theorem), und demonstrierten deren Anwendbarkeit am Beispiel einer Bakteriophage. Diese Arbeiten fanden im Medical Research Council (MRC-) Labor für Molekulare Biologie in Cambridge statt. In Deutschland war die Gruppe um Hoppe am damaligen Max-Planck-Institut (MPI) für Eiweiß und Lederforschung (heutigen MPI für Biochemie) in Martinsried bei München Wegbereiter auf dem Gebiet der Elektronentomographie von Protein-Kristallstrukturen [Hoppe et al. (1968); Hoppe (1969)]. In den USA demonstrierte Hart (1968), wie durch die Aufzeichnung und anschließende Überlagerung mehrerer Projektionen (*Polytropic Montage*) zusätzliche Information aus kontrastarmen Abbildungen von biologischen Materialien gewonnen werden kann.

Der Durchbruch zur breiten Anwendung der ET gelang jedoch erst mit den technologischen Entwicklungen Ende der 1980er, Anfang der 1990er: Mithilfe mikroprozessorgesteuerter TEMs, hinreichend leistungsfähiger Computertechnik und CCD Kameras gelang es einerseits den experimentellen Aufwand zu reduzieren, und andererseits die numerisch anspruchsvolle 3D-Rekonstruktion in die Praxis umzusetzen.

---

<sup>1</sup>Johann Radon (1887-1956), österreichischer Mathematiker.

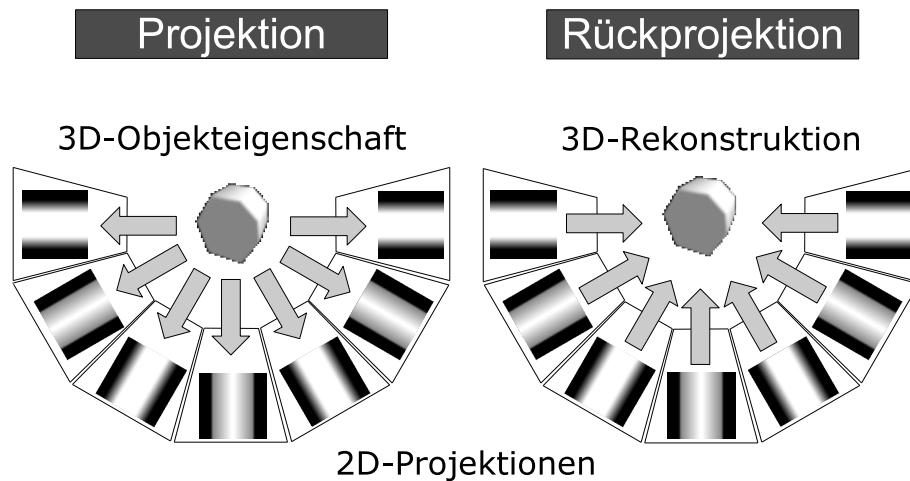


Abbildung 4.1.: Tomographisches Prinzip. Die 3D-Objekteigenschaft wird aus seinen 2D-Projektionen (links) durch Rückprojektion (rechts) wieder in 3D rekonstruiert.

Abbildung 4.1 zeigt das tomographische Prinzip bestehend aus den beiden Schritten Projektion (links) und Rückprojektion (rechts). Nach Ausführung des Projektionsschrittes liegt eine Serie von 2D-Projektionen ein und desselben Objektes aus verschiedenen Richtungen vor (Kippserie). In diesem Kontext ist wichtig zu klären, was der Begriff Projektion im mathematischen Sinne bedeutet, und im Falle der ET, ob das im TEM aufgezeichnete Signal einer Projektion entspricht, oder zumindest durch eine bijektive Abbildung in eine solche überführt werden kann (Abschn. 4.2).

Aus der Kippserie wird im zweiten Schritt, der Rückprojektion, die interessierende 3D-Objekteigenschaft wieder rekonstruiert. Dazu existieren eine Reihe von 3D-Rekonstruktionsmethoden, wovon die bekanntesten auf dem Gebiet der ET in Abschnitt 4.3 behandelt werden.

Neben den theoretischen Grundlagen ist auch die praktische Umsetzung der ET ein Schwerpunkt dieses Kapitels. Dazu gehört zunächst die automatisierte Aufzeichnung einer Kippserie (Absch. 4.4). Deren Projektionen sind jedoch aufgrund der Ungenauigkeiten des TEM-Goniometers i. d. R. noch wenige  $nm$  zueinander verschoben. Um die Verschiebungen nachträglich (offline) zu korrigieren, bedarf es deshalb bestimmter Ausrichtungsmethoden (Abschn. 4.5). Erst nach Anwendung dieser Methoden auf die Kippserie kann aus dieser das dreidimensionale Tomogramm rekonstruiert werden.

Die mittels ET rekonstruierten 3D-Daten leiden häufig unter einem sehr geringen Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Um diesem Problem entgegenzutreten, wurden in der ET mehrere Ansätze zur Rauschfilterung entwickelt oder aus anderen Gebieten adaptiert. Eine sehr effiziente Methode, welche auch in dieser Arbeit Anwendung findet, ist die Rauschfilterung durch Nichtlineare Anistrophe Diffusion (Abschn. 4.7). Um schlussendlich die rekonstruierten 3D-Daten zur weiteren Analyse auf einen Computerbildschirm geeignet in 2D darzustellen, existieren eine Reihe von

Methoden der 3D-Visualisierung (Abschn. 4.6).

In dieser Arbeit wurde ausschließlich die Ein-Achsen-Tomographie (*single-axis tomography*) angewandt. Dabei lässt sich, wie im nun folgenden Abschnitt 4.1 aufgezeigt wird, das tomographische Problem in 2D lösen und problemlos in 3D erweitern. Aus diesem Grund genügt es für das Verständnis der Ein-Achsen-Tomographie, die hier behandelten Grundlagen der Tomographie in zwei Dimensionen zu beschreiben.

## 4.1. Ein-Achsen-Tomographie

Bei der Ein-Achsen-Tomographie (EAT) wird das 3D-Objekt  $f(x, y, z)$  um eine feste Kippachse  $y$  innerhalb des Winkelbereichs von  $\alpha = \pm 90^\circ$  rotiert. Dabei wird zu jeder Kippung  $\alpha_k$  die entsprechende 2D-Projektion  $\hat{f}(\hat{x}, y, \alpha_k)$  aufgezeichnet. Das Ergebnis dieser Aufzeichnung ist die Kippserie  $\hat{f}(\hat{x}, y, \alpha)$ .

Die Abbildung 4.2 veranschaulicht den Vorteil der EAT, das tomographische Problem in 2D lösen zu können, da jede zur Kippachse  $y$  senkrechte Ebene einzeln betrachtet werden kann. Dies bedeutet für die tomographische Rekonstruktion, dass jede Scheibe  $j$  des 3D-Objektes  $f(x, y_j, \alpha)$  aus dem zugehörigen Schnitt durch die Kippserie (Sinogramm)  $\hat{f}(\hat{x}, y_j, \alpha)$  einzeln und nacheinander in 2D rekonstruiert wird. Man beachte dabei die unterschiedliche Bedeutung von  $x$  und  $\hat{x}$ : Während  $x$  eine auf das Objekt bezogene körperfeste Koordinate bedeutet, ändert sich die Richtung der  $\hat{x}$ -Koordinate mit dem Kippwinkel  $\alpha$  (s. Abb. 4.2 rechts). Die Gesamtzahl  $N$  der für die Rekonstruktion des 3D-Objektes benötigten 2D-Schnitte ist durch das Abtastintervall  $d_y$  in  $y$ -Richtung der Kippserie gegeben.

Eine Weiterentwicklung zur Ein-Achsen-Tomographie bildet die Zwei-Achsen-Tomographie (*double axis tomography*). In dieser werden zwei zueinander senkrechte Kippserien in Ein-Achsen Geometrie aufgezeichnet, rekonstruiert und deren Ergebnisse zu einem Tomogramm überlagert [Penczek et al. (1995); Mastronarde (1997)]. Insbesondere wenn nicht der volle Winkelbereich von  $\pm 90^\circ$  für die 3D-Rekonstruktion zur Verfügung steht, kann dadurch die Qualität der Tomogramme verbessert werden.

## 4.2. Projektion

Das Linienintegral einer zweidimensionalen Funktion  $f(x, y)^2$ , gegeben durch

$$\hat{f}_\alpha(l) = \int_L f(x, y) \, ds, \quad (4.1)$$

entspricht im mathematischen Sinne einer orthogonalen Projektion. Wie in Abbildung 4.3 veranschaulicht, gibt der Index  $\alpha$  die Richtung des Pfades  $L$  an,

---

<sup>2</sup>In den Abschnitten 4.2-4.3.3 wird für die zweidimensionale Beschreibung  $z \rightarrow y$ , um die mathematischen Zusammenhänge klarer zu gestalten.

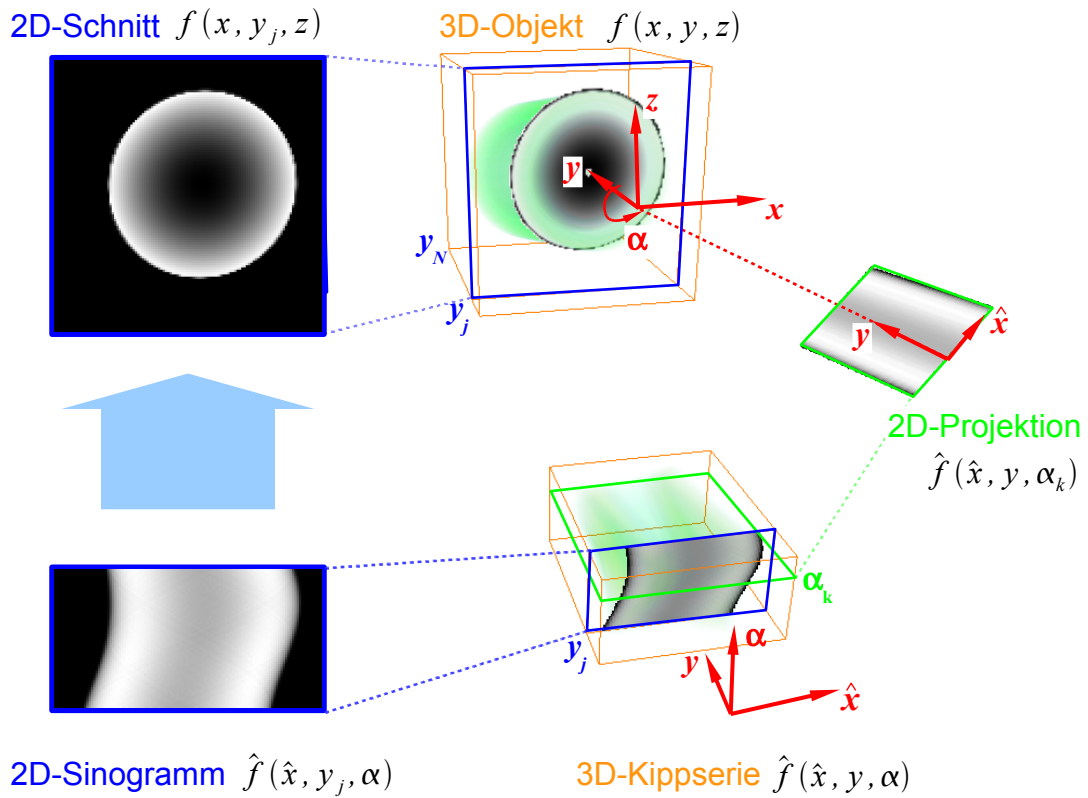


Abbildung 4.2.: Prinzip der Ein-Achsen Tomographie. Die Rekonstruktion des 3D-Objektes  $f(x, y, z)$  aus der Kippserie  $\hat{f}(\hat{x}, y, \alpha)$  erfolgt, indem nacheinander die 2D-Schnitte  $f(x, y_j, \alpha)$  durch das Objekt aus den entsprechenden Sinogrammen  $\hat{f}(\hat{x}, y_j, \alpha)$  für  $j = 1, \dots, N$  rekonstruiert werden.

der senkrecht zur Koordinate  $l$  verläuft. Das Ergebnis der Projektion ist die eindimensionale Funktion  $\hat{f}_\alpha(l)$ .

Die (kontinuierliche) Zusammenfassung aller Projektionen  $\hat{f}_\alpha(l)$  zu einer zweidimensionalen Funktion  $\hat{f}(\alpha, l)$  stellt den Übergang zur Radontransformation dar. Diese wird im nächsten Abschnitt 4.2.1 näher erläutert. Danach folgt in 4.2.2 die Herleitung des Projektions-Schnitt-Theorems, welches für das Verständnis der Tomographie und ihrer Rekonstruktionsmethoden überaus wichtig ist. Abschließend wird in 4.2.3 der Zusammenhang zwischen aufgezeichnetem Signal und orthogonaler Projektion (Projektionsbedingung) für die drei Abbildungsmodi TEM, STEM und Holographie diskutiert.

### 4.2.1. Die Radontransformation

Die Transformation vom Ortsraum in den Raum der Projektionen (Radonraum) bezeichnet man als Radontransformation (RT). Die Radontransformierte einer zweidimensionalen Ortsfunktion  $f(x, y)$  ist wieder eine zweidimensionale Funktion

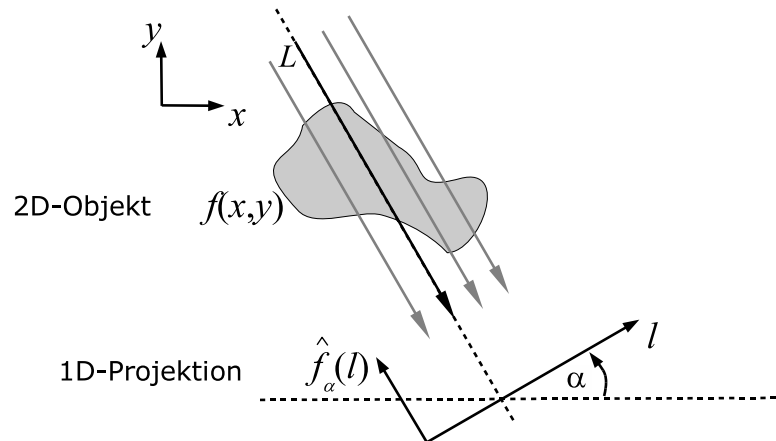


Abbildung 4.3.: Eindimensionale Projektion  $\hat{f}_\alpha(l)$  einer zweidimensionalen Objektfunktion  $f(x, y)$ . Die Projektion erfolgt im Winkel  $\alpha$  zur  $x$ -Achse.

$$\hat{f}(\alpha, l) := \text{RT} \{f(x, y)\} = \int_L f(x, y) ds \quad (4.2)$$

Entsprechend Abbildung 4.3 gelten die beiden Relationen

$$ds = -dx \sin(\alpha) + dy \cos(\alpha) \quad (4.3)$$

und

$$l = x \cos(\alpha) + y \sin(\alpha). \quad (4.4)$$

Dabei ist zu beachten, dass  $ds$  und  $l$  senkrecht aufeinander stehen.

In Abbildung 4.4 ist die Radontransformation am Beispiel eines homogen gefüllten Rechtecks (A) veranschaulicht. Die diskretisierte Form der 2D-Radontransformierten wird auch als *Sinogramm* bezeichnet (B).

### 4.2.2. Das Projektions-Schnitt-Theorem

Eine für die Tomographie sehr wichtige Beziehung, insbesondere für das Verständnis der Rekonstruktionsmethoden, ist das Projektions-Schnitt-Theorem (*projection-slice theorem*). Zur mathematischen Herleitung wird mit einer zu Gl. (4.2) modifizierten Darstellung des Linienintegrals begonnen [Radermacher (2006)]. Es sei

$$\hat{f}_{\hat{\xi}}(l) = \iint_{-\infty}^{+\infty} f(\hat{r}) \delta(l - \hat{\xi} \hat{r}) d^2r, \quad (4.5)$$

worin die Integration von  $f(\hat{r})$  entlang der Linie  $ds$  durch das Produkt von  $f(\hat{r})$  mit einer Deltafunktion und anschließender Integration über die Fläche  $d^2r = dx dy$

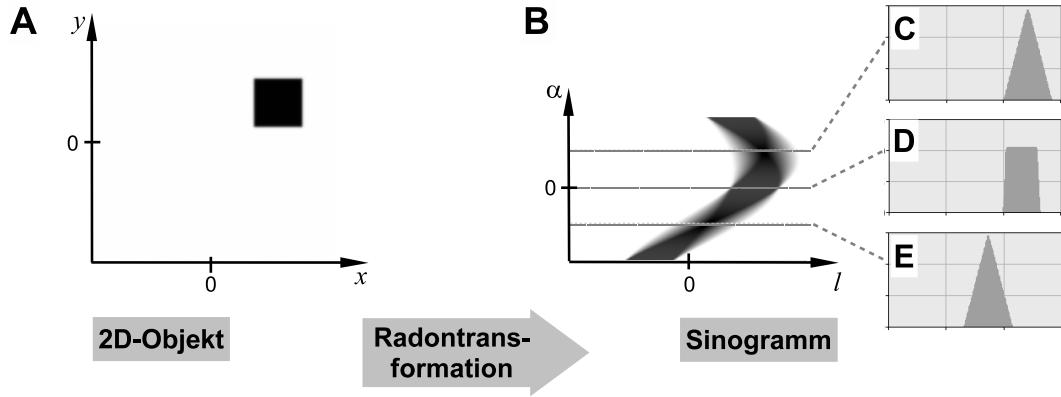


Abbildung 4.4.: Zweidimensionale Radontransformation eines Testobjektes.

**A:** Zweidimensionale Objektfunktion im Ortsraum.

**B:** Radontransformierte von (A) im Radonraum, welche auch als Sinogramm bezeichnet wird.

**C-E:** Vertikale Profile im Sinogramm entsprechend der eindimensionalen Projektionen unter den Winkeln  $\alpha = -45^\circ$  (C),  $\alpha = 0^\circ$  (D) und  $\alpha = +45^\circ$  (E).

ausgedrückt wird. Die Deltafunktion liefert nur dann einen Beitrag, wenn  $l = \hat{\xi} \hat{r}$ , wobei  $\hat{\xi} = (\cos(\alpha), \sin(\alpha))^T$  ist. Die eindimensionale Fouriertransformierte der Projektion berechnet sich zu

$$\hat{F}_{\hat{\xi}}(g) = \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{f}_{\hat{\xi}}(l) \exp(-i2\pi gl) dl. \quad (4.6)$$

Nach Einsetzen von  $\hat{f}_{\hat{\xi}}(l)$  und Vertauschen der Integrale ergibt sich

$$\hat{F}_{\hat{\xi}}(g) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(\hat{r}) \exp(-i2\pi gl) \delta(l - \hat{\xi} \hat{r}) dl d^2r. \quad (4.7)$$

Nach Integration über  $dl$  bleibt

$$\hat{F}_{\hat{\xi}}(g) = \iint_{-\infty}^{+\infty} f(\hat{r}) \exp(-2\pi i g \hat{\xi} \hat{r}) d^2r. \quad (4.8)$$

Erweitern mit der Deltafunktion  $\delta(\hat{g}' - g\hat{\xi})$  führt zunächst zu

$$\hat{F}_{\hat{\xi}}(g) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \iint_{-\infty}^{+\infty} f(\hat{r}) \exp(-2\pi i \hat{g}' \hat{r}) d^2r \delta(\hat{g}' - g\hat{\xi}) d^2g'. \quad (4.9)$$

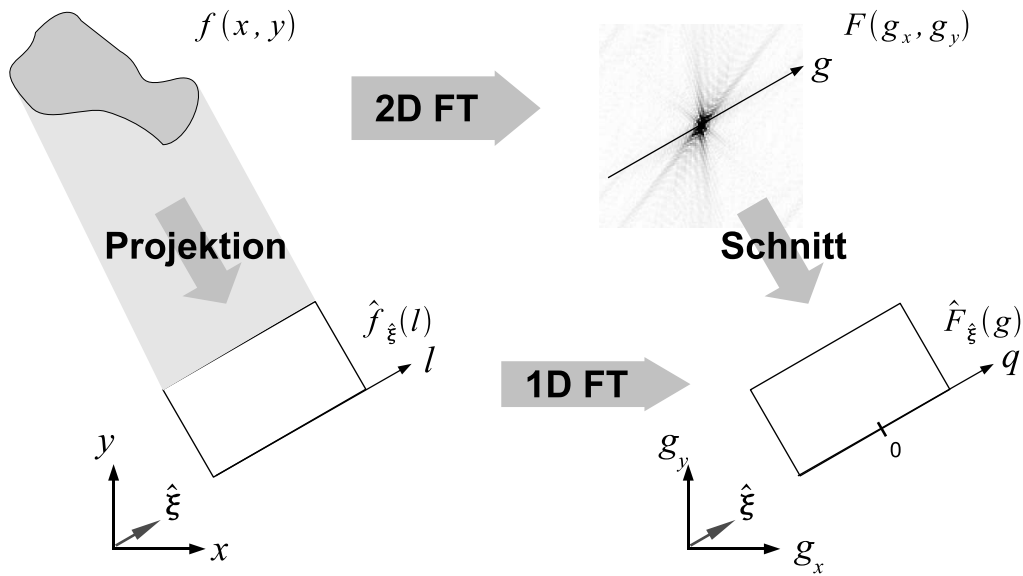


Abbildung 4.5.: 2D-Projektions-Schnitt Theorem. Die eindimensionale Projektion  $\hat{f}_{\hat{\xi}}(l)$  einer zweidimensionalen Funktion  $f(x, y)$  im Ortsraum entspricht im Fourierraum einem eindimensionalen Schnitt  $\hat{F}_{\hat{\xi}}(g)$  durch den Ursprung der Fouriertransformierten  $F(g_x, g_y)$ .

Darin lässt sich das innere Integral als zweidimensionale Fouriertransformierte  $F(\hat{g}')$  der Funktion  $f(\hat{r})$  identifizieren. Folglich schreibt sich die eindimensionale Fouriertransformierte  $\hat{F}_{\hat{\xi}}(g)$  der eindimensionalen Projektion  $\hat{f}_{\hat{\xi}}(l)$  als

$$\hat{F}_{\hat{\xi}}(g) = \iint_{-\infty}^{+\infty} F(\hat{g}') \delta(\hat{g}' - g\hat{\xi}) d^2 g'. \quad (4.10)$$

Das ist das Projektions-Schnitt-Theorem für den zweidimensionalen Fall (Abb. 4.5). Für den allgemeinen Fall lautet es:

“Die  $(n - 1)$ -dimensionale Projektion einer  $n$ -dimensionalen Funktion im Ortsraum entspricht im Fourierraum einem  $(n - 1)$ -dimensionalen Schnitt durch den Ursprung der Fouriertransformierten der  $n$ -dimensionalen Funktion. Dabei sind Schnitt im Fourierraum und Projektionsebene im Ortsraum zueinander parallel (winkeltreu).”

### 4.2.3. TEM Abbildungsmodi und Projektionsbedingung für Tomographie

Die Frage, ob eine Abbildung im TEM zur Anwendung der Tomographie geeignet ist, wird in der Literatur oft als Projektionsbedingung (*projection requirement*) [Hawkes (2006); Midgley und Weyland (2003)] oder Projektionstheorem [Glaeser (1985)] bezeichnet. Entscheidend für die Gültigkeit der Projektionsbedingung ist, welcher

funktionale Zusammenhang zwischen dem aufgezeichnetem Signal im jeweiligen Abbildungsmodus (z.B. TEM, STEM, EFTEM, Holographie) und projizierter Eigenschaft (z.B. Potential, Massendichte) besteht. Die Projektionsbedingung gilt, sofern das aufgezeichnete Signal als bijektive (bei Hawkes (2006) monotone) Funktion der projizierten Eigenschaft beschreibbar ist.

#### Hellfeld-(BF)TEM-Tomographie

Die BFTEM-Tomographie basiert auf der exponentiellen Beziehung (4.11)

$$I(x, y) = I_0 \exp(-n\sigma t(x, y)) = I_0 \exp\left(-\frac{t(x, y)}{\lambda_{el}}\right) \quad (4.11)$$

zwischen aufgezeichneter Intensität und projizierter Massendichte<sup>3</sup>. Diese Relation gilt vor allem für amorphe Materialien, weshalb BFTEM-Tomographie bspw. zur 3D-Untersuchung von Katalysatoren (z.B. Koster et al. (2000); Kuebel et al. (2005); Friedrich et al. (2009)) oder Polymeren (z.B. Spontak et al. (1988); Jinnai und Spontak (2009); Loos et al. (2009)) erfolgreich benutzt wird. Dagegen ist bei deren Anwendung zur Untersuchung (poly-)kristalliner Proben Vorsicht geboten, da nahe niedrig-indizierter Zonenachsen von Kristallen obige Relation nicht gilt. Vor allem für die 3D-Abbildung polykristalliner Objekte bestehend aus schweren Elementen ist die TEM-Tomographie wenig<sup>4</sup> geeignet.

Die BFTEM-Tomographie wird auch in der Zellbiologie zur 3D-Abbildung von in Eis eingebetteten (frozen-hydrated) Proben erfolgreich angewandt (z.B. Glaeser (1985); Toyoshima und Unwin (1988); Nickell (2001); Lucic et al. (2005); McIntosh et al. (2005)). Dabei wird von einer Kombination von schwachen Amplituden- und Phasenkontrast ausgegangen. Um den Phasenkontrast besser nutzen zu können, finden in jüngster Zeit (Zernike-)Phasenplatten verstärkt Anwendung [Barton et al. (2008); Danev et al. (2010)].

#### STEM-Tomographie

Im Bereich der Materialwissenschaften ist die STEM-Tomographie die zur Zeit vermutlich am häufigsten verwendete Methode für die 3D-Abbildung von Materialien im Nanometerbereich [Weyland et al. (2001); Weyland (2001); Midgley und Weyland (2003)]. Die STEM-Tomographie wird auch Z-Kontrast Tomographie genannt, da die Intensität, welche mit dem HAADF (High Angle Annular Dark-Field) STEM-Detektor aufgezeichnet wird, von der Ordnungszahl  $Z$  des abzubildenden Elements abhängt. Der differentielle Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  für in den Winkelbereich des STEM-Detektors ( $(50 - 100) \text{ mrad}$ ) inkohärent gestreuten Elektronen wird im Wesentlichen durch die Rutherfordstreuung ( $d\sigma/d\Omega \propto Z^2$ )

---

<sup>3</sup>Die projizierte Massendichte wird in der Literatur auch Massendicke (mass thickness) genannt. Das Weglassen des kleinen Wörtchens “mass” führte aber in mehreren Publikationen bei der Argumentation bzgl. der Projektionsbedingung zu der falschen Behauptung, dass das aufgezeichnete Signal eine monotone Funktion der Dicke sein muss.

<sup>4</sup>Im Falle sehr kleiner Kristalle ( $< 5 \text{ nm}$ ) ist TEM-Tomographie dennoch möglich.



und durch thermisch diffuse Streuung (TDS) Pennycook (1989); Weyland et al. (2001) ( $d\sigma/d\Omega \propto Z^{1.5}$ ) bestimmt. Für die Anwendbarkeit des STEM-Modes für die Tomographie ist die genaue Kenntnis der  $Z$ -Abhängigkeit zunächst nicht zwingend notwendig. Entscheidend dafür ist jedoch, dass sich die aufgezeichnete HAADF-Intensität als bijektive Funktion der projizierten Objekteigenschaft (Ordnungszahl, Wirkungsquerschnitt) beschreiben lässt. Dennoch wäre die Kenntnis der  $Z$ -Abhängigkeit für die quantitative Analyse der rekonstruierten 3D-Daten von großem Nutzen. Dazu existieren bisher noch keine Ergebnisse.

#### Holographische Tomographie

Die Phase der holographisch rekonstruierten Objektwelle erfüllt wegen der in Abschnitt 2.1.2 eingeführten Phase-Grating-Näherung (PGA 2.6), wonach die Phase proportional zum projizierten Objektpotential ist, klar die Projektionsbedingung. Damit lässt sich das 3D-Objektpotential aus der Kippserie von Phasenverteilungen tomographisch rekonstruieren (Kapitel 5).

#### Andere tomographische Abbildungsmodi

Auch die aufgezeichneten 2D-Verteilungen im (energiegefilterten) EFTEM-Modus und (Dunkelfeld) DFTEM-Modus gehorchen unter bestimmten Voraussetzungen der Projektionsbedingung und sind daher vielversprechende tomographische Verfahren. Dies belegen bereits existierende Publikationen zur EFTEM-Tomographie [Möbus et al. (2003); Midgley und Weyland (2003); Leapman et al. (2004); Aronova et al. (2007)] und zur DFTEM-Tomographie [Bals et al. (2006); Barnard et al. (2006); Hata et al. (2008); Beanland et al. (2010)].

Somit bietet das TEM eine Reihe von Abbildungsmodi, welche für die 3D-Abbildung anwendbar sind. Jedoch sollte jede einzelne Aufnahme in einer Kippserie kritisch im Sinne der Projektionsbedingung, d.h. der Gültigkeit der oben vorgenommenen Näherungen für den jeweiligen Abbildungsmodus, analysiert werden, und gegebenenfalls bei der tomographischen Rekonstruktion unberücksichtigt bleiben.

### 4.3. Rekonstruktion des Tomogramms

Nach Radermacher (2006) lassen sich die meisten der derzeit benutzten Methoden zur tomographischen Rekonstruktion in die folgenden drei Klassen einordnen:

- Fourierrekonstruktionsmethoden [De Rosier und Klug (1968); Crowther et al. (1970b); Smith et al. (1973)],
- modifizierte Rückprojektionsmethoden [Bracewell und Riddle (1967); Radermacher (2006)] und
- direkte iterative Methoden [Gordon et al. (1970); Gilbert (1972a)].

Bei den Fourierrekonstruktionsmethoden werden die Fouriertransformierten der Projektionen der Kippserie entsprechend des Projektions-Schnitt-Theorems (Abschn. 4.2.2) im Fourierraum überlagert. Die daraus resultierende Verteilung entspricht der Fouriertransformierten des Tomogramms.

Zu den modifizierten Rückprojektionsmethoden gehört bspw. die Gewichtete Rückprojektion (*Weighted Back-projektion*). Diese findet gemeinsam mit der Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (*SIRT*), eine direkte iterative Methode, in der ET gegenwärtig sehr breite Anwendung. Aus diesem Grund widmen sich die folgenden Unterabschnitte 4.3.1 und 4.3.2 diesen beiden Rekonstruktionstechniken.

Darüberhinaus existieren eine Reihe von weiteren Rekonstruktionsmethoden [Deans (1983); Kuba und Herman (2008)], wie z.B. *Block ART* [Fernández et al. (2002); Carazo et al. (2006)] oder Algebraische Rekonstruktion durch Inversion der Projektionsmatrix anhand von Singulärwertzerlegung [Lubk (2010)].

Die Auflösung der tomographisch rekonstruierten Verteilungen wird vor allem vom Kippwinkelinkrement der Kippserie bestimmt (Abschn. 4.3.3). Zudem steht in der ET sehr häufig nur ein begrenzter Kippwinkelbereich  $< 180^\circ$  für die tomographische Rekonstruktion zur Verfügung. Dadurch verschlechtert sich maßgeblich die Auflösung des Tomogramms in den entsprechenden Richtungen, was im Fourierraum gleichbedeutend mit einem Informationsverlust innerhalb eines keilförmigen Bereichs (*Missing Wedge*) ist (Abschn. 4.3.4).

#### 4.3.1. Gewichtete Rückprojektion

Die Gewichtete Rückprojektion (*Weighted Back-Projection*, W-BP) wurde zuerst von Vainshtein (1970) vorgeschlagen und von Gilbert (1972b) umgesetzt.

Die zweidimensionale<sup>5</sup> W-BP startet zunächst mit einer Einfachen Rückprojektion (*Simple Back-Projection*, BP). Dabei wird jede 1D-Projektion  $\hat{f}_\alpha(l)$  entgegen ihrer ursprünglichen Projektionsrichtung in eine vorgegebene Fläche<sup>6</sup> rückprojiziert und aufsummiert (Abb. 4.6 oben). Im Fourierraum (Abb. 4.6 unten) entspricht dies der Summation der 1D-Fouriertransformierten der Projektionen  $\hat{F}_\alpha(g)$ . Da alle  $\hat{F}_\alpha(g)$  durch den Ursprung  $\hat{\mathbf{g}} = (0,0)^T$  verlaufen, wird häufiger über kleine Raumfrequenzen  $\hat{\mathbf{g}}$  summiert. Die dadurch verursachte Überbetonung der niedrigen Raumfrequenzen lässt die resultierende Verteilung einer Einfachen Rückprojektion  $\tilde{f}(\hat{\mathbf{r}})$  'verschmiert' aussehen.

Ausgehend vom Projektions-Schnitt-Theorem (Gl. 4.10)

$$\hat{F}_\xi(g) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(\hat{\mathbf{g}}') \delta(\hat{\mathbf{g}}' - g\hat{\xi}) d^2 g' \quad (4.12)$$

lässt sich der Fehler in der Einfachen Rückprojektion analysieren: Im kontinuierlichen Fall bei vollem Kippwinkelbereich entspricht die BP im Fourierraum

<sup>5</sup>Der Übergang in drei Dimensionen ist für die Ein-Achsen-Tomographie in Abschn. 4.1 erläutert.

<sup>6</sup>Die maximal zu rekonstruierende Kreisfläche ist  $A = \pi/4l_m^2$ .

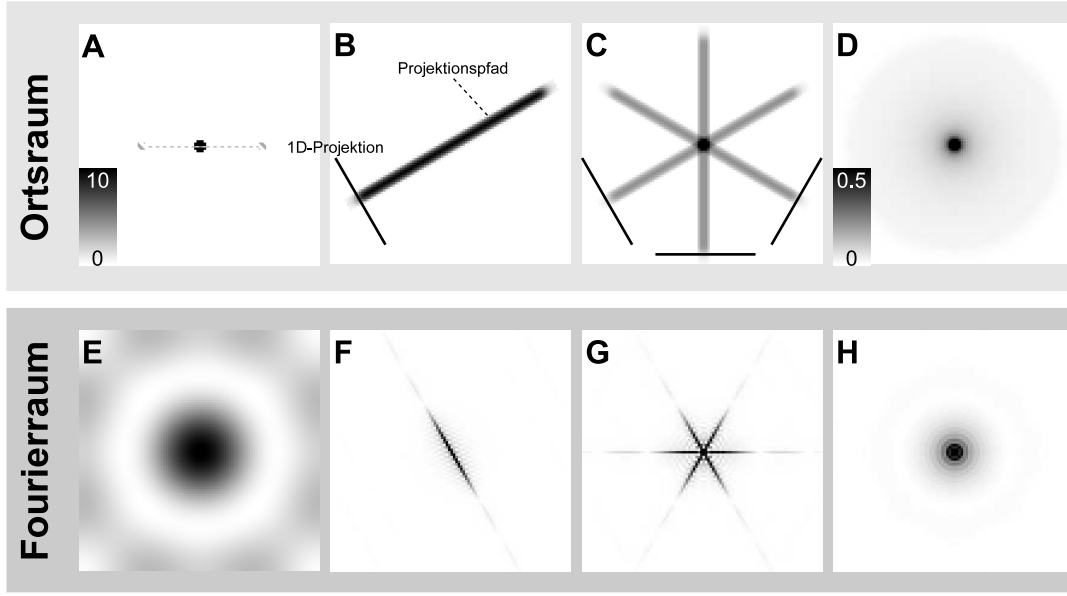


Abbildung 4.6.: Prinzip der Einfachen Rückprojektion. Zur Rekonstruktion eines kreisförmigen 2D-Objektes (A) wird jeder Punkt der 1D-Projektionen entgegen der ursprünglichen Projektionspfade rückprojiziert und aufsummiert. Durchführung der Einfachen Rückprojektion mit einer (B), drei (C) und 360 Projektionen (D). Man beachte dabei die unterschiedliche, den Grauwertbalken entsprechende Skalierung in (A) und (D). Dies entspricht im Fourierraum einer Summation der zentralen Schnitte (F-H) durch die Fouriertransformierte des Testobjektes (E).

$\tilde{F}(\hat{g})$  der Integration über alle Richtungen  $\hat{\xi}$ ,

$$\tilde{F}(\hat{g}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int F(\hat{g}') \delta(\hat{g}' - g\hat{\xi}) d\hat{\xi} d^2 g'. \quad (4.13)$$

Nutzt man die Eigenschaft der Delta-Funktion  $\delta(ax) = 1/|a|\delta(x)$  für  $\hat{\xi}$ , so führt dies zum Ausdruck

$$\tilde{F}(\hat{g}) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(\hat{g}') \frac{1}{|g|} \delta(\hat{g}' - \hat{g}) d^2 g' = \frac{1}{|g|} F(\hat{g}). \quad (4.14)$$

Das Ergebnis der BP im Fourierraum ist somit nicht direkt die Fouriertransformierte der Objektfunktion, sondern lediglich deren Produkt mit der Funktion  $1/|g|$ . Dies lässt sich auch damit erklären, dass bei der Einfachen Rückprojektion die Funktionaldeterminante  $|g|$  bei der Integration in Polarkoordinaten nicht berücksichtigt wird. Um die Fouriertransformierte der Objektfunktion zu erhalten, muss die falsche Gewichtung in  $\tilde{F}(\hat{g})$  durch

$$F(\hat{\mathbf{g}}) = \tilde{F}(\hat{\mathbf{g}}) \cdot |g| \quad (4.15)$$

korrigiert werden. Da dies für den analytischen (kontinuierlichen) Fall gilt, wird die Funktion  $W(\hat{\mathbf{g}}) = |g|$  auch als *analytisches GewichtungsfILTER* bezeichnet.

In der Praxis wird jedoch der limitierten Anzahl der für die Rekonstruktion zur Verfügung stehenden Projektionen besser Rechnung getragen, indem die genaue Abtastung im Fourierraum ermittelt wird. Um die Abtastwerte zu berechnen, werden diejenigen Abtastpunkte, welche zu den einzelnen Projektionen gehören, auf das kartesische Gitter der diskreten 2D-Fouriertransformierten interpoliert und aufsummiert<sup>7</sup>. Die Verteilung der reziproken Abtastwerte entspricht dann dem sogenannten *exakten GewichtungsfILTER* [Radermacher (2006); Harauz und van Heel (1986)]. Zu dessen Berechnung darf das Reziproke nur dann gebildet werden, wenn der Abtastwert einen bestimmten Schwellenwert überschreitet. Auf diese Weise wird bei nicht abgetasteten Raumfrequenzen die Division durch Null vermieden.

Durch Multiplikation mit einem analytischen oder exakten GewichtungsfILTER kann jedoch hochfrequentes Rauschens in der rekonstruierten Verteilung zu sehr verstärkt werden. Aus diesem Grund werden in der Praxis die GewichtungsfILTER oft durch eine Fensterfunktion bandbegrenzt (Hanning-Window, Gauss-Filter).

Abbildung 4.7 zeigt die Gewichtete Rückprojektion des schon in Abb. 4.6 verwendeten Beispiels eines kleinen Kreisscheibchens. Die Fouriertransformierte der BP (A) wird jeweils mit analytischem (B) und exaktem (D) GewichtungsfILTER multipliziert. Der Vergleich der Resultate zeigt, dass das Testobjekt (E) bei Benutzung eines exakten Filters (F) besser rekonstruiert wird als bei Benutzung eines analytischen Filters. Dies liegt vorrangig an dem zu geringen Anstieg des analytischen Filters (C).

#### 4.3.2. Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (SIRT)

Die Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (SIRT) ist eine direkte iterative Methode zur 3D-Rekonstruktion im Ortsraum. Sie wurde 1972 von Gilbert veröffentlicht [Gilbert (1972a)], nachdem zwei Jahre zuvor eine ähnliche iterative Methode, die Algebraische Rekonstruktions-Technik (ART), von Gordon publiziert wurde [Gordon et al. (1970)]. In beiden Algorithmen wird iterativ versucht, den euklidischen Abstand zwischen den experimentell bestimmten und den aus der rekonstruierten Verteilung berechneten Projektionen zu minimieren. Der Unterschied zwischen beiden besteht darin, dass in der ART<sup>8</sup> die Iteration für jede Projektionsrichtung einzeln durchgeführt wird, wogegen dies in der SIRT für alle Richtungen gleichzeitig (simultan) geschieht. Gilbert konnte zeigen, dass die SIRT

<sup>7</sup>Man kann die endlichen Ausdehnung des Objektes in Projektionsrichtung (Multiplikation mit einer Gestaltsfunktion im OR) berücksichtigen, indem man die Schnitte im FR mit einer sinc-Funktion [Radermacher (2006)] oder mit deren Näherung, einer Dreiecksfunktion, faltet [Harauz und van Heel (1986)].

<sup>8</sup>Häufig ist mit ART auch die algebraische Inversion der Projektionsmatrix gemeint, was auch eher zur Bezeichnung passt.

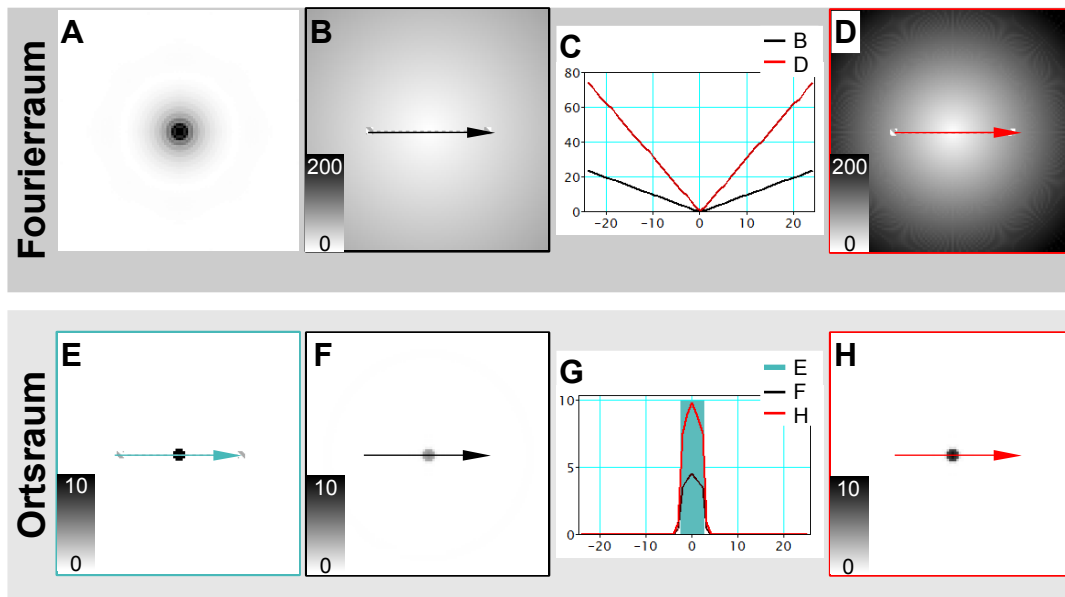


Abbildung 4.7.: Gewichtete Rückprojektion (W-BP) des Objektes aus Abbildung 4.6.

**A:** Fouriertransformierte der Einfachen Rückprojektion.

**B:** Analytisches und (D) exaktes Gewichtungsfiler.

**C:** Linienprofile durch das Zentrum der Filter

**E,F,H:** Testobjekt (E), Rekonstruktion durch W-BP mit analytischem (F) und exaktem Gewichtungsfiler (H).

**G:** Linienprofile durch Testobjekt und Rekonstruktionen.

der ART hinsichtlich der Minimierung der Diskrepanz (des Abstandes) zwischen Original- und rekonstruierter Verteilung überlegen ist. Nicht zuletzt deshalb hat sich die SIRT in der ET, insbesondere bei ihrer Anwendung für die STEM Tomographie, durchgesetzt [Weyland et al. (2001); Weyland (2001); Midgley und Weyland (2003); Friedrich et al. (2005); Midgley et al. (2007); Midgley und Dunin-Borkowski (2009)].

Unter Verwendung des in Abbildung 4.8 dargestellten Schemas sollen die wesentlichen Schritte der SIRT am Beispiel einer, ähnlich der in Gilbert (1972a) benutzten, zweidimensionalen Testverteilung demonstriert werden:

1. Der Algorithmus startet (wie jeder iterative Ansatz) mit einer Annahme für die zu rekonstruierende 2D-Verteilung. Bei Gilbert (1972a) wird dazu der Mittelwert des Sinogramms benutzt. Dagegen beginnen modernere SIRT-Algorithmen mit einer Einfachen Rückprojektion des experimentellen Sinogramms [Weyland (2001)].
2. Die daraus erhaltene 2D-Verteilung wird vorwärts projiziert. Das Ergebnis ist ein berechnetes Sinogramm.
3. Die Differenz<sup>9</sup> von experimentellen und berechneten Sinogramm wird gebildet,

<sup>9</sup>Alternativ kann man auch den Quotient berechnen [Weyland (2001)].

#### 4. Elektronentomographie

4. und mittels einer Einfachen Rückprojektion rekonstruiert.
5. Die 2D-Rekonstruktion wird durch Addition<sup>10</sup> der beiden nach Schritt 1 und 4 erhaltenen Rückprojektionen modifiziert.
6. a) Ausgehend von der modifizierten 2D-Rekonstruktion werden die Schritte 2-6 solange iterativ wiederholt, bis  
 b) die vor Beginn festgelegte Anzahl an Iterationen erreicht, oder der vor Beginn festgelegte Schwellenwert für die verbleibende Abweichung unterschritten wird.

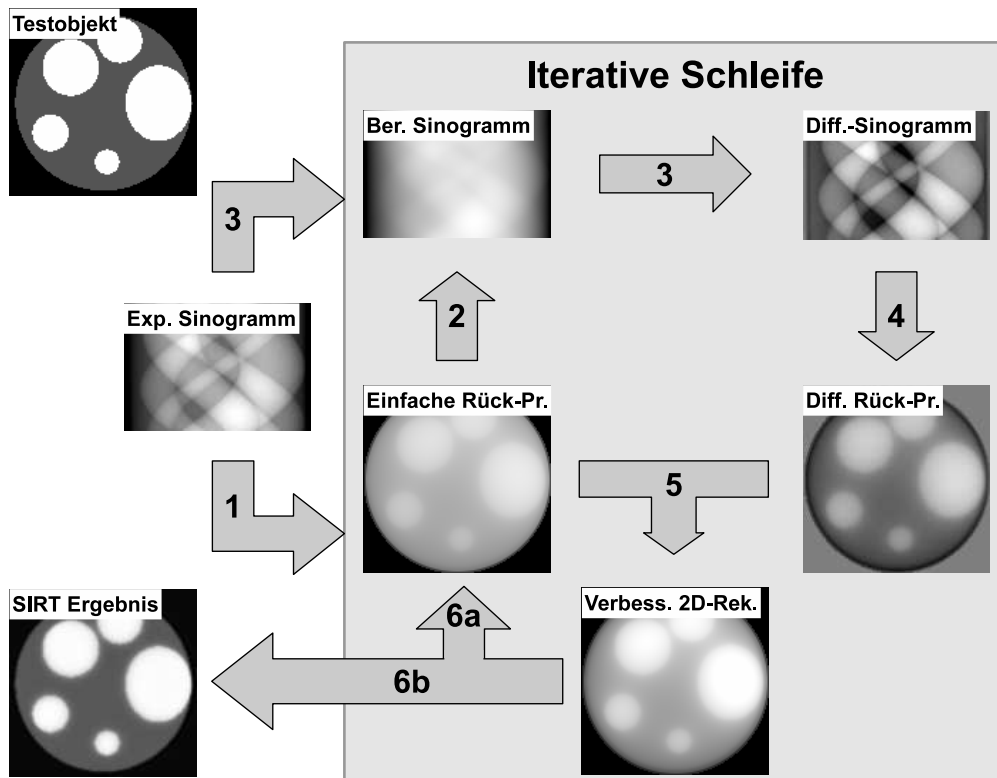


Abbildung 4.8.: SIRT-Algorithmus. Um das Testobjekt aus seinem Sinogramm mittels SIRT zu rekonstruieren, werden im einzelnen die im Text erläuterten Schritte 1-6b ausgeführt. Nach 30 Iterationen erhält man die unten links gezeigte Verteilung.

Nach Gilbert (1972a) lautet die rekursive Vorschrift zur Berechnung der Verteilung  $f_{ij}^{q+1}$  nach  $q + 1$  Iterationen

$$f_{i,j}^{q+1} = \max \left[ f_{i,j}^q + \frac{\sum \hat{f}_{\alpha,l}}{\sum L_{\alpha,l}} - \frac{\sum \hat{f}_{\alpha,l}^q}{\sum N_{\alpha,l}}, 0 \right]. \quad (4.16)$$

<sup>10</sup>Multiplikation, falls im Schritt 3 der Quotient berechnet wurde.

Darin bedeuten  $f_{ij}^q$  der an der Stelle  $i, j$  ermittelte Wert nach  $q$  Iterationen. Mit  $\sum \hat{f}_{\alpha,l}$  und  $\sum \hat{f}_{\alpha,l}^q$  wird die Summation über alle Positionen  $(\alpha, l)$  des experimentellen  $\hat{f}_{\alpha,l}$  und des berechneten Sinogramms  $\hat{f}_{\alpha,l}^q$  ausgedrückt, die zur Position  $(i, j)$  in der 2D-Rekonstruktion beitragen. Dabei gilt der in Abbildung 4.3 dargestellte Zusammenhang zwischen den Koordinaten  $(x, y)$ , hier  $(i, j)$  im Ortsraum und  $(\alpha, l)$  im Radonraum. Des Weiteren bezeichnet  $L_{\alpha,l}$  die von  $\alpha$  und  $l$  abhängige projizierte Länge des Pfades, und  $N_{\alpha,l}$  die Anzahl der Abtastpunkte von  $f_{ij}$  innerhalb des Pfades. Vor allem die genaue Berechnung der beiden zuletzt genannten Größen ist für eine schnelle Konvergenz des SIRT-Ergebnisses bedeutsam. Im ungeeignetsten Fall kann die falsche Berechnung zur Divergenz führen.

Die Bedingung  $f_{i,j}^{q+1} \geq 0$  in Gl. (4.16) gilt immer für Intensitäten, jedoch nicht notwendigerweise für holographisch rekonstruierte Phasen. Eigene Tests haben zudem gezeigt, dass diese Bedingung die Konvergenz der SIRT nicht verbessert.

### 4.3.3. Tomographische Auflösung

Ausgehend vom Projektions-Schnitt-Theorem (Abschnitt 4.2.2) lässt sich ein Abtast-Kriterium für die Ein-Achsen-Tomographie festlegen. Nach Bracewell und Riddle (1967) hängt die Auflösung  $d$  innerhalb eines tomographisch rekonstruierten kreisförmigen Bereichs mit Durchmesser  $D$  über den Ausdruck

$$d = \frac{D \Delta\alpha}{2} \quad (4.17)$$

vom Winkelinkrement  $\Delta\alpha$  der Kippserie ab<sup>11</sup>. Dieses Abtast-Kriterium lässt sich sehr anschaulich im Fourierraum mit den reziproken Größen  $1/2d$  und  $1/D$  (Abtastintervall im FR) wiedergeben (Abb. 4.9). Es wird in der ET auch als *Crowther criterion* bezeichnet [Crowther et al. (1970a)].

Zudem ist von Interesse, wieviele Projektionen  $N_\alpha$  erforderlich sind, um eine bestimmte Auflösung  $d$  zu erreichen. Das Einsetzen von  $\Delta\alpha = \pi/N_\alpha$  in Gl. (4.17) liefert als Antwort  $N_\alpha = \pi D/2d$ <sup>12</sup>. Für die Rekonstruktion eines kreisförmigen Objektes mit einem Durchmesser von  $D = 100 \text{ nm}$  und einer Auflösung von  $d = 1 \text{ nm}$  bedarf es beispielsweise  $N_\alpha = 157$  Projektionen. Dies entspricht einer Winkelschrittweite von  $1.14^\circ$ .

Unter Verwendung des Abtast-Kriteriums lässt sich außerdem abschätzen, aus wieviel unabhängigen Bildpunkten  $N = D/d$  der Durchmesser des rekonstruierten Kreises bei festem  $\Delta\alpha$  besteht. Für  $\Delta\alpha = 2^\circ$  sind dies nur  $N = 2/\Delta\alpha = \pi/180 \approx 58$  Bildpunkte.

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde die tomographische Auflösungsgrenze  $d$  so festgelegt, dass die zugehörige Raumfrequenz  $1/2d$  mindestens einmal (mit

<sup>11</sup>Der hier behandelte Auflösungsbegriff ist zunächst unabhängig von der Auflösung  $d_{xy}$  der Projektionen. Die endgültige Auflösung ist durch  $d_{tot} = \max(d, d_{xy})$  gegeben.

<sup>12</sup>Dieser Ausdruck enthält einen zusätzlichen Faktor  $1/2$  im Vergleich zu Frank (2006). Die Ursache dafür ist die hier gewählte Definition von  $d$  als Auflösung (Abtastintervall). Bei Frank (2006) entspricht  $d$  der reziproken Nyquistfrequenz.

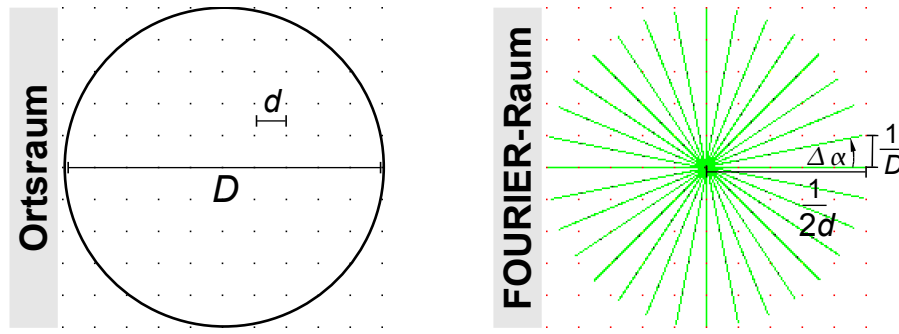


Abbildung 4.9.: Auflösung der Ein-Achsen-Tomographie. Die Auflösung  $d$  der tomographisch rekonstruierten Verteilung hängt vom Durchmesser  $D$  des Kreises in dem rekonstruiert wird, und von der Winkelschrittweite  $\Delta\alpha$  zwischen den einzelnen Projektionen ab. Die Darstellung im Fourierraum verdeutlicht die geometrische Beziehung dieser Größen. Darin entspricht jede grüne Linie dem von der Fouriertransformierten einer 1D-Projektion abgetasteten Bereich.

Gewichtung 1) abgetastet werden muss (Abb. 4.9, rechts). Ist jedoch die numerische Abtastung größer, d.h.  $d_{num} > d$ , so können auch höherfrequente Bereiche  $1/2d \leq g < 1/2d_{num}$  bei (bilinear) Interpolation zumindest teilweise (mit Gewichtung kleiner 1) abgetastet werden. Abbildung 4.10 veranschaulicht diesen Sachverhalt, wobei (A) als Übertragungsfunktion der Tomographie interpretiert werden kann, welche höhere Raumfrequenzen dämpft. Entscheidend für die Auflösung von Tomogrammen aus experimentellen Daten ist in diesem Kontext das spektrale Signal-zu-Rausch Verhältnis (SSNR) [Unser et al. (1987); Penczek (2002); Unser et al. (2005); Penczek und Frank (2006)]. Dabei stellt sich die Frage, ob das SSNR bei höheren Raumfrequenzen ( $g < 1/2d$ ) hinreichend hoch ist, um ein verlässliches Signal bei der entsprechend höheren Auflösung zu rekonstruieren. Zudem wirken sich im experimentellen Fall noch weitere Faktoren in der Kippserie, wie Ausrichtungsfehler, Strahlenschäden, Begrenzung des Winkelbereichs (s. nächster Abschnitt) auf die Auflösung des Tomogramms aus.

#### 4.3.4. Missing Wedge

Der im vorangegangenen Kapitel behandelte Auflösungsbegriff (Gl. 4.17) gilt für den Idealfall äquidistanter Winkelschrittweite über einem Winkelbereich von  $\pm 90^\circ$ . Leider ist bei der praktischen Anwendung, d.h. bei der Aufzeichnung von Kippwinkelserien, in der ET die maximal erreichbare Kippung vor allem durch

- die Abschattung der zu untersuchenden Objektstelle durch andere Bereiche der TEM Probe und
- den begrenzten Kippbereich heutzutage üblicher Goniometer von  $\pm 80^\circ$  begrenzt.



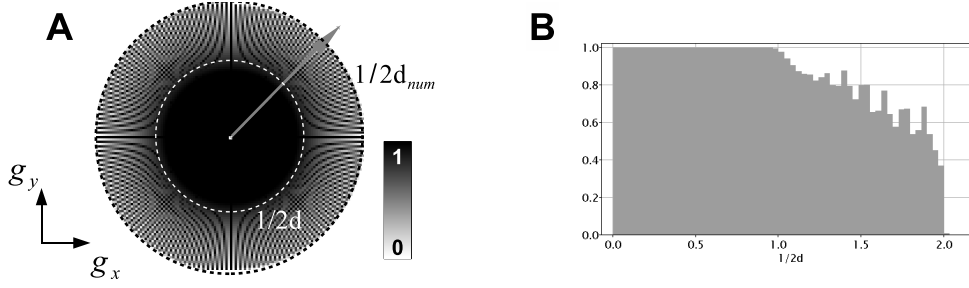


Abbildung 4.10.: Abtastung im Fourierraum bei Interpolation auf das kartesische Grid. (A) Bei numerischer Abtastung  $d_{num} > d$  und bilinearer Interpolation der zentralen Schnitte (FT der Projektionen) werden auch Raumfrequenzen größer als  $1/2d$  (Gl. 4.17) zumindest teilweise abgetastet. Das Linienprofil (B) zeigt, wie in radialer Richtung die Abtastung (Gewichtung) zu hohen Raumfrequenzen abnimmt.

Steht für die tomographische Rekonstruktion einer Verteilung nur Projektionen innerhalb eines begrenzten Winkelbereichs zur Verfügung, so ist jedoch nach dem Projektions-Schnitt-Theorem (Abschn. 4.2.2) auch der abgetastete Bereich im Fourierraum unvollständig. Der nicht abgetastete Bereich weist, wie Abb. 4.11 zeigt, die Form eines Keils auf und wird deswegen *Missing Wedge* genannt.

Der Einfluss des Missing Wedge lässt sich durch die Übertragungsfunktion

$$W_{MW}(g_x, g_z) = \begin{cases} 1 & \text{falls } |\alpha| < \alpha_0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (4.18)$$

beschreiben<sup>13</sup>, wobei zwischen den kartesischen Koordinaten  $g_x, g_z$  und den Polarkoordinaten  $g, \alpha$  die Beziehungen  $g_x = g \cos(\alpha)$  und  $g_z = g \sin(\alpha)$  gelten. Die Funktion  $W_{MW}$  überträgt somit nur Raumfrequenzen bis zu einem maximalen Kippwinkel  $\alpha_0$ . Die Inverse Fouriertransformierte von  $W_{MW}$  ist die Point-Spread-Function (PSF)

$$h(x, z) = \frac{1}{\pi^2 (z^2 \tan(\alpha_0) - x^2 / \tan(\alpha_0))}, \quad (4.19)$$

mit der jeder Punkt des Tomogramms gefaltet ist. Der analytische Ausdruck der PSF wurde von Tam und Perez-Mendez (1981a,b) hergeleitet, wobei die Bandbegrenzung in radialer Richtung vernachlässigt wurde. Der Ausdruck ist in Abbildung 4.12 (A) graphisch dargestellt, und stimmt sehr gut mit der numerisch berechneten Gewichteten Rückprojektion eines Punktes (Abb. 4.12 B) bei Anwendung des in Abb. 4.12 (C) gezeigten Gewichtungsfilters überein.

Die Funktion  $h(x, z)$  besitzt nach Carazo (1992) drei wesentliche Merkmale:

- (i) Elongation in  $z$ -Richtung (Abb. 4.12 D). Radermacher leitete einen

<sup>13</sup>Ab diesem Abschnitt gilt wieder die Konvention bzgl. der Koordinaten lt. Abschnitt auf Seite vii.

#### 4. Elektronentomographie

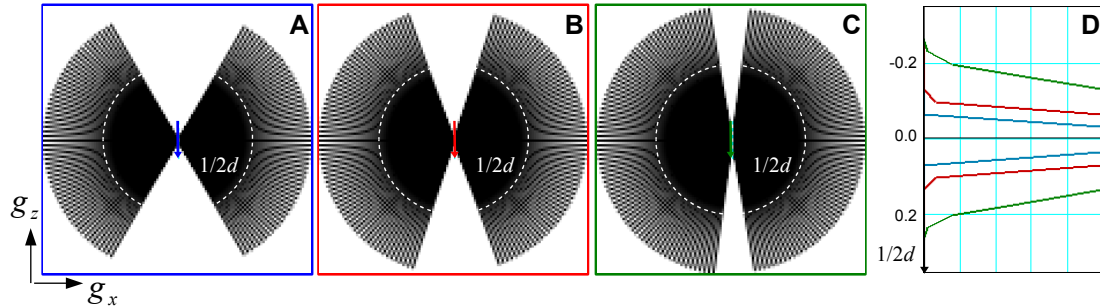


Abbildung 4.11.: Abtastung im Fourierraum nach tomographischer Rekonstruktion bei einem begrenzten Winkelbereich von (A)  $\pm 60^\circ$ , (B)  $\pm 70^\circ$  und (C)  $\pm 80^\circ$ . Der fehlende Bereich (weiß) wird aufgrund seiner Keilform *Missing Wedge* genannt. Durch den Missing Wedge reduziert sich die Auflösung in vertikaler Richtung dramatisch, wie im Linienprofil (D) entlang der farbigen Pfeile in (A-C) zu erkennen ist.

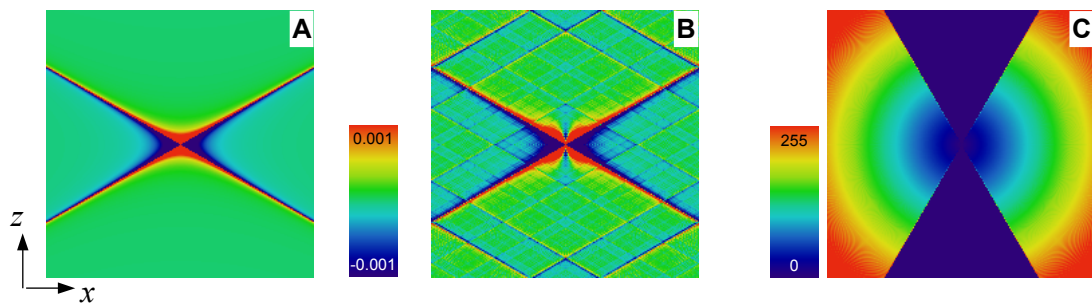


Abbildung 4.12.: Verschmierung (PSF) eines rekonstruierten Bildpunktes bei Missing Wedge.

**A:** Analytische Beschreibung nach Gl. 4.19 für  $\alpha_0 = 60^\circ$ .

**B:** Gewichtete Rückprojektion eines Punktes (Winkelbereich  $\pm 60^\circ$ , Schrittweite  $0.2^\circ$ )

**C:** Gewichtungsfiler im Fourierraum für die Berechnung von (B).

sogenannten Elongationsfaktor

$$e_{xz} = \sqrt{\frac{(\alpha_0 + \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0))}{(\alpha_0 - \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0))}} \quad (4.20)$$

her, der angibt um wieviel die Ausdehnung der PSF in  $z$ -Richtung größer ist als die in  $x$ -Richtung [Radermacher (1980); Radermacher und Hoppe (1980)]. Da dieser Faktor sehr häufig in Verbindung mit dem Missing Wedge herangezogen wird (z.B. Weyland (2001); Midgley und Weyland (2003); Kuebel et al. (2005); Friedrich et al. (2009)), ist dessen vollständige Herleitung im Anhang A.3 ausgeführt.

- (ii) Seitenschwinger in  $x$ -Richtung. Diese sind in den Abbildungen 4.12 (A) und (B) als negative (blaue) Bereiche identifizierbar.
- (iii) zwei scharfe Kanten entlang der Geraden  $x = \pm z \tan(\alpha_0)$ , die sich im Ursprung kreuzen.

Diese extrem delokalisierte PSF darf in der quantitativen Analyse von Tomogrammen, die nicht aus dem vollen Kippbereich rekonstruiert wurden, keinesfalls außer Acht gelassen werden.

## 4.4. Automatisierte Elektronentomographie

Der technische Fortschritt Ende der 1980er, Anfang der 1990er Jahre des letzten Jahrhunderts führte zu enormen methodischen Weiterentwicklungen in der ET. Insbesondere

- Mikroprozessor-gesteuerte Elektronenmikroskope,
- Mikroprozessor-gesteuerte Goniometer (sogenannte Compustages) und
- CCD-Kameras zur quantitativen (linearen) Aufzeichnung und Auslese der Daten in das Bildverarbeitungssystem eines hinreichend schnellen Computers

bildeten die Grundlage für die Entwicklung der Automatisierten ET (AET). Die technischen Voraussetzungen waren somit vorhanden, um alle für die Aufnahme einer Kippserie notwendigen TEM Operationen, wie Kippung, Fokussierung und Bewegung der Probe bzw. Verschiebung des Elektronenstrahls (image shift), automatisiert ablaufen zu lassen. Der Einsatz von Computern hat neben der Verringerung des manuellen Aufwandes zudem den Vorteil, die TEM Operationen mithilfe neuer Prozeduren auch exakter durchzuführen. Ein Beispiel dafür ist die Autofokus-Routine [Koster et al., 1987], bei der die durch Strahlkippung induzierte Verschiebung der defokussierten Abbildung mittels Kreuzkorrelation (Abschn. 4.5.1) gemessen, und daraus der Defokus ermittelt wird. Koster leistete sowohl bei der Automatisierung der TEM-Justierung im allgemeinen (autoalignment oder

#### 4. Elektronentomographie

autotuning) [Koster und de Ruijter (1992)], als auch in der ET im speziellen [Koster et al. (1992)], diesbezüglich Pionierarbeit.

Auch für die 3D-Abbildung von biologischen Objekten (z.B. Zellen und deren inneren Bestandteilen) ist die Automatisierung der ET unabdingbar. Die hohe Strahlenempfindlichkeit der biologischen Präparate erfordert Abbildungen bei sehr geringen Elektronendosen. Aus diesem Grund ist es notwendig, die Bestrahlungszeit der interessierenden Stelle während der gesamten tomographischen Aufnahme zu minimieren. Zur Erfüllung dieser Bedingung führten Dierksen und Mitarbeiter die Automatisierung der sogenannten “low-dose”-Prozedur durch [Dierksen et al. (1992, 1993)]. Dabei werden zusätzlich zum eigentlichen Objektbereich (EXPOSURE-Bereich) zwei weitere Bereiche zur Defokuskorrektur (FOCUS-Bereich) und zur Driftkorrektur (TRACKING-Bereich) auf der TEM-Probe definiert, zwischen denen dann automatisch während der Aufzeichnung der Kippserie gewechselt wird [Rath et al. (1997); Koster et al. (1997)]. Diese Arbeiten in den frühen 90er Jahren werden in der Klassifizierung von Koster und Barcena (2006) als erste Generation (*Image Shifts and Focus Tracking*) der AET bezeichnet.

Schon in der ersten Generation wurde besondere Aufmerksamkeit auf hohe Reproduzierbarkeit der TEM-Elektronik und Goniometer-Mechanik gelegt. Diesbezüglich wurden Ende der 90er Jahre beachtliche Verbesserungen bei der mechanische Konstruktion von Haltern und TEM-Goniometern erzielt. Ziese et al., 2002 nutzten zuerst die Reproduzierbarkeit modernerer Goniometer, um eine Vorkalibrierung vor der eigentlichen Aufnahme der Kippserie vorzunehmen. Dieser Ansatz wird nach Koster und Barcena (2006) als zweite Generation (*Pre-Calibration*) bezeichnet. Die Vorkalibrierung erfolgt in zwei Schritten: Im ersten Schritt wird bei relativ niedriger Vergrößerung (z.B.  $5000\times$ ) und grober Schrittweite (z.B.  $5^\circ$ ) eine Kippserie aufgezeichnet; die dabei auftretenden Verschiebungen und Defoci werden gemessen; und die gemessenen Werte werden an ein geometrisches Model (Abschn. 5.2.1) für die Probenbewegung angefitet. Im zweiten Schritt werden die ermittelten Fitparameter benutzt, um die grobe Driftkorrektur während der Aufnahme einer zweiten Kippserie bei höherer Vergrößerung und feinerer Winkelschrittweite zu realisieren. Die dadurch präziser bestimmten Verschiebungen bilden schliesslich die Datenbasis für die Verschiebungskorrektur bei weiteren Kippserien.

Die dritte Generation der Automatisierung wird als Vorhersage (*Prediction*) bezeichnet und bezieht sich ausschliesslich auf die Arbeiten von Zheng et al. (2004). Der Gewinn besteht darin, dass während der Aufnahme der Kippserie die Fitparameter der Probenbewegung nach jeder Kippung (ohne Vorkalibrierung) sofort bestimmt werden, um die Objektposition für die nachfolgende Kippung vorherzuberechnen. Falls die so ermittelten Werte zur Korrektur nicht ausreicht, wird die restliche Verschiebung mittels Kreuzkorrelation bestimmt und entsprechend korrigiert. Die daraus gewonnene neue Information wird zur Verfeinerung der Vorhersage bei der nächsten Kippung benutzt. Auf diese Weise kann die Vorherberechnung immer an die gegebenenfalls sich ändernden experimentellen

Bedingungen angepasst werden. Tatsächlich funktioniert die Methode nur solange, wie das bereits erwähnte geometrische Modell für die Probenbewegung zutrifft. Für Goniometer mit weniger reproduzierbaren Bewegungen bietet Mastronarde (2005) die Lösung, die Probenposition durch lineare Extrapolation aus den beiden vorhergehenden Kippungen robust vorherzusagen. In die dritte Generation der Automatisierung lassen sich auch eigene Arbeiten einreihen Wolf et al. (2010). Eine ausführliche Beschreibung dazu findet sich in Abschnitt 5.2.

Die Automatisierung ist eng verknüpft mit der Entwicklung von Spezialsoftware, welche die oben erwähnten Prozeduren enthält und eine benutzerfreundliche Bedienung zur möglichst einfachen, schnellen und bestenfalls vollautomatischen Aufzeichnung der Kippserie bereitstellt. Insbesondere auf dem Gebiet der Cryo-ET wurden bislang eine Reihe von Softwarepaketen, wie z.B.:

- “EMACT/EMCAT (Electron Microscopic Automated Computerized Tomography / Electron Microscopic Computerized Axial Tomography) system” Fung et al. (1996),
- “Automated tomography system on a JEOL IVE” Rath et al. (1997),
- “Matlab TOM toolbox” Nickell et al. (2005),
- “SerialEM” Mastronarde (2005),
- “Leginon system” Suloway et al. (2005),
- “UCSF tomography” (UCSF steht für University of California, San Francisco) Zheng et al. (2007),
- Kombination von UCSF und Leginon System Suloway et al. (2009)

für die tomographische Aufzeichnung entwickelt. Nach Kenntnis des Autors sind alle aufgelisteten Softwareprogramme nicht-kommerzielle Produkte. Hinzu kommt eine Reihe von kommerzieller Software, wie

- “Explore3D” FEI company, Eindhoven, Netherlands,
- “3D Tomography-Acquisition Software” Gatan Inc., Pleasanton, U.S. (1996–2009),
- “Tomography Package” TVIPS GmbH, Gauting, Germany,

die eine automatisierte Aufzeichnung von Kippserien erlauben.

## 4.5. Ausrichtung der Kippserie

Auch mit den derzeit modernsten Elektronenmikroskopen ist es leider noch nicht möglich, eine Kippserie so aufzunehmen, damit diese direkt im Anschluss in 3D rekonstruiert werden kann. Die Ursache dafür sind Verschiebungen zwischen den einzelnen Projektionen der Kippserie, die mithilfe geeigneter Bildverarbeitungsprozeduren im Computer korrigiert werden müssen. Dieser Prozess wird Ausrichtung oder Alignierung (*alignment*) der Kippserie genannt.

Während die Orientierung der Kippachse durch das Experiment vorgegeben ist, kann deren Projektion innerhalb des Gesichtsfeldes der Kippserie durch Parallelverschiebung im Ausrichtungsprozess frei gewählt werden. Eine geeignete Wahl dafür wäre zum Beispiel, die projizierte Kippachse genau in den Schwerpunkt des zu rekonstruierenden Objektes zu legen.

In der ET werden zur Ausrichtung von Kippserien eine Reihe von Methoden verwendet. Zwei Standardmethoden, welche Bestandteil jedes modernen Tomographiesoftwarepaketes sind, sind die Kreuzkorrelation und die Ausrichtung mithilfe von Bezugsmarkern (*fiducial-marker alignment*). Die Prinzipien, Stärken und Schwächen der beiden Methoden werden in den folgenden Abschnitten 4.5.1 und 4.5.2 dargelegt.

Darüberhinaus existieren für die Ausrichtung der Kippserie weitere Algorithmen (Abschnitt 4.5.3), mit deren Hilfe eine höhere Genauigkeit und Zuverlässigkeit als bei der Kreuzkorrelation erzielt werden kann, ohne dabei zusätzliche Marker (Goldpartikel) auf die Probe bringen zu müssen.

### 4.5.1. Ausrichtung mittels Kreuzkorrelation

Die Kreuzkorrelation (engl.: cross-correlation) eignet sich als sehr einfache Methode zur Bestimmung der Verschiebung zwischen zwei sonst identischen Abbildungen. Neben ihrer Anwendung in der ET [Guckenberger (1982); Frank et al. (1987); Frank und McEwen (1992)], wird sie bspw. auch bei der Rekonstruktion holographischer Fokus-Serien [Coene et al. (1996); Koch (2008)] benutzt. Die Kreuzkorrelation (Symbol  $\star$ ) zweier komplexer Funktionen<sup>14</sup>  $f(x)$  und  $g(x)$  ist definiert durch

$$[f \star g](x) \equiv \int_{-\infty}^{\infty} \bar{f}(x') g(x + x') dx'. \quad (4.21)$$

Sie entspricht der Faltung (Symbol:  $*$ ) der komplex konjugierten, am Ursprung gespiegelten Funktion  $\bar{f}(-x)$  mit der Funktion  $g(x)$ :

$$[f \star g](x) = \bar{f}(-x) * g(x). \quad (4.22)$$

Ist die Funktion  $g(x)$  die zu  $f(x)$  um  $x_0$  verschobene Funktion  $f(x - x_0)$ , dann liefert die Kreuzkorrelation

---

<sup>14</sup>z.B. holographisch rekonstruierte Objektwellen

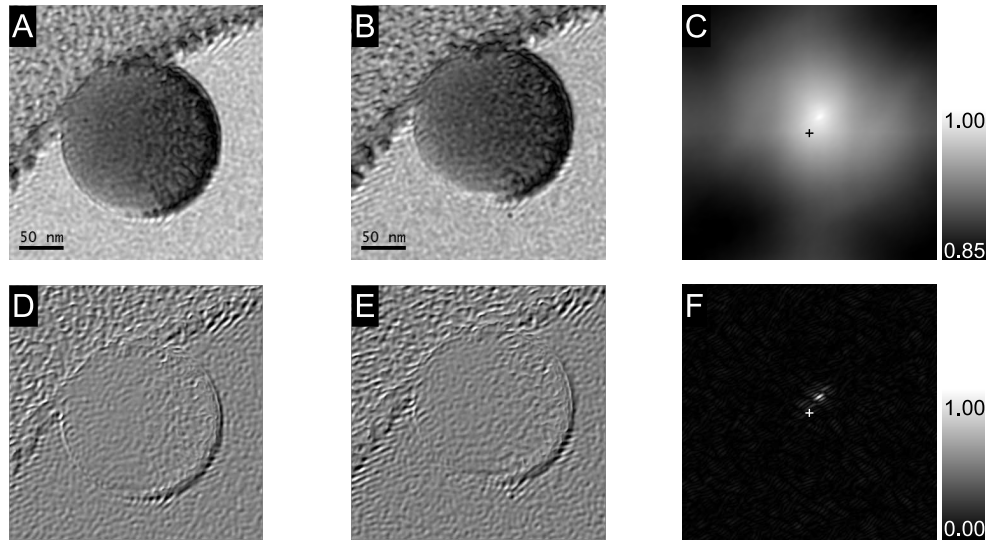


Abbildung 4.13.: Verschiebungsbestimmung mittels Kreuzkorrelation am Beispiel einer Latexkugel. Zwischen den beiden zueinander verschobenen Amplitudenbildern (A) und (B) wird die Kreuzkorrelation (C) berechnet. Die Position des Peaks bzgl. des Mittelpunkts (markiert durch das Kreuz) gibt die Verschiebung in  $x$  und  $y$  wieder. Der Einsatz eines Sobel-Filters, welches die Kanten in den Amplitudenbildern (D-E) verstärkt, führt in der Kreuzkorrelation (F) zu einem viel schmaleren und höheren Peak. Man beachte, die unterschiedliche Skalierung von (C) und (F) entsprechend der Grauwertbalken.

$$[f \star f](x - x_0) = f(x) \star f(x - x_0) \quad (4.23)$$

die um  $x_0$  verschobene Autokorrelation  $f \star f$ . Da die Autokorrelation immer ihren maximalen Peak im Ursprung besitzt, kann mittels der Kreuzkorrelation aus dem Abstand des Maximums zum Ursprung die Verschiebung bestimmt werden. Die Berechnung der Kreuzkorrelation verläuft mit heutiger Rechentechnik recht schnell und ist leicht zu implementieren.

Ein Problem tritt jedoch bei kontrastarmen Verteilungen mit groben (niederfrequenten) Details auf, da dort der Kreuz-Korrelationspeak sehr breit wird, und somit nicht mehr präzise genug definiert ist. Diesem Problem kann durch Kantendetektions-Filter, wie Sobel- oder Laplace-Filter [Russ (1995)], entgegnet werden. Der Vergleich der Kreuzkorrelationen ohne und mit Anwendung eines Sobel-Filters ist in Abbildung 4.13 am Beispiel einer Latexkugel veranschaulicht.

Ein weiteres Problem bei der Ausrichtung von Kippserien mittels Kreuzkorrelation ist die paarweise Anwendung auf jeweils benachbarte Projektionen, da nur diese einander hinreichend ähnlich sind. Die sukzessive Anwendung kann aber zur Folge haben, dass sich die Fehler bei der Ausrichtung der gesamten Kippserie akkumulieren.

Bei planaren Proben, wie sie z.B. oft in der Zellbiologie benutzt werden, besteht die Möglichkeit ein “Cosine-stretching” durchzuführen [Guckenberger (1982)]. Dabei wird jede Projektion der Kippung  $\alpha$  vor Anwendung der Kreuzkorrelation senkrecht zur Kippachse um das  $1/\cos(\alpha)$ -fache gestreckt. Dadurch korrigiert sich der Effekt, dass ein Abstand in der Projektionsebene bei  $\alpha$ -Kippung um das  $\cos(\alpha)$ -fache senkrecht zur Kippachse gestaucht wird. Jedoch scheitert dieser Ansatz bei dickeren, d.h. in allen drei Raumrichtungen ähnlich ausgedehnten, Objekten. Generell ist die Kreuzkorrelation für dickere Objekte weniger geeignet.

Die Kreuzkorrelation wird wegen ihrer mangelnden Genauigkeit oft nur zur Grobausrichtung benutzt.

##### 4.5.2. Ausrichtung anhand von Bezugspunkten

Ziel der Ausrichtung der Kippserie anhand von Bezugspunkten (*Fiducial-marker alignment*) ist es, die quadratische Abweichung zwischen den in den TEM-Abbildungen gemessenen 2D-Positionen der Bezugspunkte (Marker) und den aus einem 3D-Marker-Modell berechneten durch geeignete Verschiebung zu minimieren. Die Methode wurde zuerst von Lawrence (1983) und Berriman et al. (1984) unabhängig voneinander entwickelt. Darauf folgten eine Reihe von Weiterentwicklungen und Anwendungen z.B. Luther et al. (1988); Jing und Sachs (1991); Penczek et al. (1995).

In der Praxis werden oft kleine kolloidale Goldpartikel als Marker benutzt, indem diese aus einer Lösung auf die Probe aufgebracht werden. Für die Berechnung der 2D-Positionen werden die Transformationen von der Objekt- in die Bildebene, d.h. Projektion und Rotation sowie ferner Vergrößerungsänderungen und Bildverzeichnungen, durch Matrizen beschrieben. Da in dieser Arbeit diese Methode der Ausrichtung der Kippserie nur in Einzelfällen mithilfe der IMOD-Software [Kremer et al. (1996)] durchgeführt wurde, wird hier die Ausrichtung mittels Markern nicht vertieft. Diesbezüglich sei auf ausführliche Beschreibungen in Lawrence (1992); Penczek et al. (1995) und Mastronarde (2006) verwiesen.

##### 4.5.3. Ausrichtung ohne Bezugspunkte

Der Verzicht auf die für die Ausrichtung zwar sehr hilfreichen Marker hat zum einen den Vorteil, dass die Probe durch Aufbringen von Goldpartikeln vor Aufnahme der Kippserie nicht zusätzlich behandelt werden muss. Zum anderen gibt es im Tomogramm keine kontrastreichen Marker, die wichtige Bereiche überdecken könnten. Deshalb werden Ansätze benötigt, welche ohne Verwendung zusätzlicher Marker genauer sind als die Kreuzkorrelation. Zwei Ansätze, welche dies leisten, sollen hier erwähnt werden: detailbasierende Methoden (*feature-based methods*) [Brandt et al. (2001); Brandt und Ziese (2006); Brandt (2006)], und 3D-Modell basierende Methoden [Dengler (1989); Brandt (2006)].

Die detailbasierenden Methoden stellen im Prinzip eine Erweiterung zu der Ausrichtungsmethode anhand von Bezugspunkten dar. Die Erweiterung besteht



darin, dass automatisch in der Kippserie nach signifikanten Details, die nicht notwendigerweise punktförmig sein müssen, gesucht und deren Bewegung verfolgt wird. Nach der erfolgreichen Verifizierung der Spuren mehrerer Details in allen Projektionen, kann analog mit der Ausrichtung anhand von Markern fortgefahren werden.

Die 3D-Modell basierenden Methoden folgen der Idee, iterativ die berechneten Projektionen eines 3D-Modells für die Ausrichtung der experimentellen Projektionen zu benutzen. Das 3D-Modell kann bspw. aus einem Tomogramm der nur grob ausgerichteten Kippserie gewonnen werden. Dabei ist es nach Dengler (1989) möglich, die Konvergenz dieses Verfahrens (und der 3D-Rekonstruktion generell) bei Vorgabe bestimmter Randbedingungen, wie positive Definitheit oder Konvexität, insbesondere auch bei Missing Wedge zu verbessern.

Diese Formen der Alignierung stellen die modernsten unter den Ausrichtungsmethoden dar, da diese von den Vorteilen der heutigen leistungsfähigen Computer und Algorithmen (z.B. in der Mustererkennung, GPU Programmierung) Gebrauch machen. Demzufolge besitzen diese Ansätze auch zukünftig hohes Entwicklungspotential.

## 4.6. 3D-Visualisierung

Die Kunst der 3D-Visualisierung besteht darin, den 3D-Daten, d.h. deren Volumen- und Oberflächeneigenschaften (3D-Struktur und Morphologie), auf dem zweidimensionalen Bildschirm einen dreidimensionalen Eindruck zu verleihen. Dazu sind prinzipiell zwei Schritte notwendig: erstens die Modellierung, d.h. die Erzeugung eines 3D-Modells, welches bestimmte Aspekte der Daten repräsentiert, zweitens das Rendering, d.h. die 2D-Darstellung des 3D-Modells. Zwei sehr häufig benutzte Darstellungsformen, welche auch in dieser Arbeit überwiegend Anwendung finden, sind das *Volume-Rendering* [Drebin et al. (1988); Udupa et al. (1991); Weiler et al. (2004); Abellán und Tost (2008)] und das *Surface-Rendering* [Udupa et al. (1991); Leith (1992)].

Das Surface-Rendering kann u.a. realisiert werden, indem die Voxel, deren Wert sich in einem bestimmten Intervall befindet, zu einem Gitter von polygonalen Oberflächen zusammengefasst werden (Modellierung). Die so erzeugte zweidimensionale Kontur wird daraufhin anhand von Algorithmen dargestellt, die bspw. verdeckte Oberflächen entfernen und bei Rotation wieder auftauchen lassen (*Z-Buffer*) oder die Perspektiven im Zusammenspiel von Licht und Schatten berechnen können (*Rendering*).

Auch für das Volume-Rendering gibt es eine Vielzahl von Algorithmen. Die Modellierung kann bspw. so erfolgen, dass aus den experimentellen 3D-Daten ein Licht emittierendes und absorbierendes Volumen erzeugt wird. Dazu wird jedem Voxel der 3D-Daten über eine Farbpalette (*colormap*) Helligkeit und Farbe des zu emittierenden Lichtes (*luminosity*) und der Anteil des zu absorbierenden Lichtes (*opacity*) zugewiesen. Für das Rendering wird aus dem "leuchtenden" Volumen die 2D-Projektion entlang der gewünschten Blickrichtung des Betrachters berechnet.

Die beiden eben beschriebenen Techniken des Surface- und Volume-Renderings<sup>15</sup> sind in der kommerziellen Visualisierungs-Software AVIZO<sup>16</sup> (VSG Visualization Sciences Group, [www.vsg3d.com](http://www.vsg3d.com)) implementiert und werden zur Präsentation der rekonstruierten 3D-Daten innerhalb dieser Arbeit verwendet.

Zur 3D-Visualisierung gehören auch einfachere Verfahren, wie bspw. bestimmte Schnitte (*slices*) aus den 3D-Tomogrammen zu extrahieren, und deren Grauwertverteilung oder Isolinien darzustellen.

### 4.7. Rauschfilterung

Die mittels ET rekonstruierten Tomogramme (gleichwohl ob mittels Cryo-, STEM- oder Holographische ET) leiden unter einem sehr geringen Signal-zu-Rausch Verhältnis (SNR). Werden zur Rauschreduzierung gewöhnliche Rauschfilter eingesetzt, wie z.B. Binomial-, Mittelwert- oder Gauss-Filter, reduziert sich zwar das Rauschen. Gleichzeitig verringert sich aber auch die laterale Auflösung durch die Glättung der Objektstrukturen (Signal).

Dennoch gibt es die Möglichkeit, mittels des Konzepts der Nichtlinearen Anisotropen Diffusion (NAD) [Weickert (1998)] das Rauschen zu verringern und gleichzeitig Objektstrukturen zu erhalten. Dieses Konzept wurde in die ET zur Rauschreduzierung in 3D-Rekonstruktionen von Frangakis und Hegerl (2001) eingeführt und von Fernández und Li (2003) weiterentwickelt. Idee der NAD ist es, die Rauschfilterung als Diffusionsproblem zu behandeln, und dabei Stärke und Richtung des Diffusionsstromes an die Objektstruktur anzupassen. Tatsächlich ist die Rauschfilterung mit Gauss-Filter äquivalent zur Linearen Isotropen Diffusion. In diesem Fall wird der Diffusionstensor zu einem Skalar, der gleich der Standardabweichung des Gauss-Filters ist. Der Übergang von der Linearen Isotropen Diffusion zur Nichtlinearen Isotropen Diffusion wurde von Perona und Malik (1990) gezeigt, indem statt einer Diffusionskonstante eine ortsabhängige Funktion in Abhängigkeit vom Quadrat des Gradienten der Verteilung benutzt wurde. Mit diesem Schritt wird die Stärke des Diffusionsstroms an den Kanten reduziert, welche somit eine geringere Glättung erfahren. Doch bleibt weiterhin die Problematik der fehlenden Rauschglättung in der Nähe der Kanten bestehen. Die Lösung liegt in der parallelen Umleitung des Diffusionsstromes zu den Kanten. Letzteres kann durch Aufbrechen der Isotropie realisiert werden, indem der Diffusionstensor durch einen von Weickert (1998) eingeführten, sogenannten Strukturtensor ausdrückt wird, welcher dem diadischen Produkt des Gradienten der Verteilung, gefaltet mit einem Gauss-Kernel, entspricht.

Die NAD wird in der AVIZO Software [VSG Visualization Sciences Group, [www.vsg3d.com](http://www.vsg3d.com)] unter dem Namen “Edge-Preserving Smoothing” als Routine zur Rauschfilterung zur Verfügung gestellt. Das Ergebnis der Anwendung dieser Routine auf ein rauschbehaftetes Shepp-Logan Phantoms [Shepp (1980)] ist in Abbildung

---

<sup>15</sup>mittels hardwarebeschleunigter 3D-Textur Verfahren

<sup>16</sup>AVIZO ist Nachfolger der häufig bekannteren AMIRA Software.

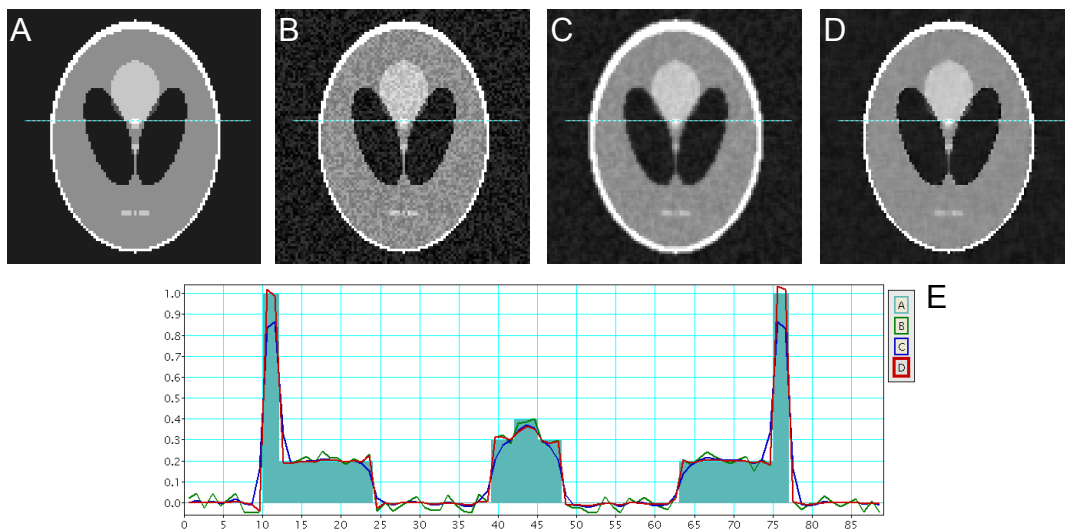


Abbildung 4.14.: Rauschfilterung mittels Nichtlinearer Anisotroper Diffusion (NAD). Auf das Shepp-Logan Phantom (A) wurde zunächst gleichverteiltes Rauschen (max. Amplitude 0.05) addiert (B). Um das Rauschen in (B) zu reduzieren, wurde einerseits ein Gauss-Filter (C) und andererseits die NAD (D) auf die Verteilung (B) angewandt. In (D) sieht man deutlich die Stärke der NAD: eine gute Rauschglättung, ohne dabei die Objektstruktur (Kanten) zu glätten. Dies verdeutlicht auch das Linienprofil (E) entlang der Linien in (A-D).

4.14 dargestellt. Im Gegensatz zur einfachen Gauss-Filterung (C) wird mittels NAD das Rauschen reduziert, ohne dabei die Objektstruktur (Kanten) zu glätten (D).

## 4.8. Zusammenfassung

Die moderne Elektronentomographie (ET) verwirklicht mit der Rekonstruktion dreidimensionaler Objekte aus ihren zweidimensionalen Projektionen Radons tomographisches Prinzip im Nanometerbereich. Dabei bedient sie sich einer Reihe der im TEM vorhandenen Abbildungsmodi (BFTEM, STEM, EFTEM, Holography), um Struktur, chemische Komposition oder elektrostatische Potentialverteilung des Objektes in 3D zu rekonstruieren. Durch Nutzung leistungsfähiger Computer zur Aufzeichnung, Ausrichtung und Rekonstruktion der Kippserien ist der manuelle und zeitliche Aufwand auf ein vertretbares Maß gesunken. Die Anwendungsgebiete der ET reichen von der Strukturbiologie (Zellen, Viren) über die Materialwissenschaften (Katalysatoren, Polymere, kristalline Nanostrukturen) bis in die Industrie (Halbleiterbauelemente).

Um die ET hinsichtlich ihrer Anwendung für die quantitative 3D-Rekonstruktion physikalischer und chemischer Eigenschaften von Nanostrukturen weiterzuentwickeln, benötigt man insbesondere

#### 4. Elektronentomographie

- angepasste Proben, Halter und Goniometer, um die Kippserie im vollen Winkelbereich aufzuzeichnen und Missing Wedge im Tomogramm zu vermeiden,
- ein besseres Verständnis des aufgezeichneten Signals im jeweiligen TEM-Abbildungsmodus,
- verbesserte Prozeduren für die computergestützte (vollautomatisierte) Aufzeichnung von Kippserien,
- exaktere Ausrichtungsmethoden (detail- und 3D-Modell-basierende Methoden),
- verbesserte Algorithmen zur 3D-Rekonstruktion (mglw. auch angepasst an das TEM-Signal).

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Teile der hier genannten Verbesserungsansätze für die Entwicklung der Holographischen Tomographie aufgegriffen und umgesetzt. Die dabei erreichten methodischen Fortschritte sind im folgenden Kapitel geschildert.

## 5. Holographische Tomographie

Die zweidimensionale Elektronenholographie (EH) besitzt den Nachteil, dass, wie bei jedem anderen 2D-Abbildungsmodus im TEM, lediglich die projizierte Information aufgezeichnet wird. Dieser Nachteil kann jedoch durch Kombination mit tomographischen Verfahren, d.h. durch Anwendung der *Elektronen-Holographische Tomographie* (EHT) kompensiert werden. Die EHT erfüllt die Projektionsbedingung der Tomographie bzgl. des dreidimensionalen elektostatischen Objektpotentials<sup>1</sup> (Abschn. 4.2.3), und ist somit zur Rekonstruktion dieser Objekteigenschaft sehr gut geeignet.

Im Fall der Ein-Achsen Tomographie (Abschn. 4.1) ist ein Phasen-Sinogramm (2D-Schnitt durch die Phasenkippsreihe senkrecht zur Kippachse) geteilt durch  $C_E$  gleich der diskretisierten 2D-Radontransformierten (s. Abschn. 4.2.1) eines 2D-Schnittes durch das 3D-Potential. Damit kann das entlang der Kippachsenrichtung  $N$ -mal abgetastete 3D-Potential rekonstruiert werden, indem jeweils die inverse 2D-Radontransformation der entsprechenden  $N$  Sinogramme ausgeführt wird.

Das Prinzip der EHT ist in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt: Zuerst erfolgt die Aufzeichnung einer Kippserie von Hologrammen im Elektronenmikroskop. Durch die anschließende Rekonstruktion der Objektwelle aus jedem Hologramm liegt eine Amplituden- und eine Phasenkippsreihe vor. Schließlich wird die Phasenkippsreihe zur 3D-Rekonstruktion des elektrostatischen Potentials verwendet. Die holographische Rekonstruktion stellt zwar einen zusätzlichen Schritt gegenüber anderen ET-Techniken dar, jedoch ist “der Lohn dieses Mehraufwandes” der direkte Zugang zur dreidimensionalen Potentialverteilung. Dies ist einzigartig in der ET, und jenseits der Möglichkeiten von bspw. BFTEM- oder (HAADF-STEM-Tomographie.

---

<sup>1</sup>Ferromagnetische Objekte seien hier unberücksichtigt.

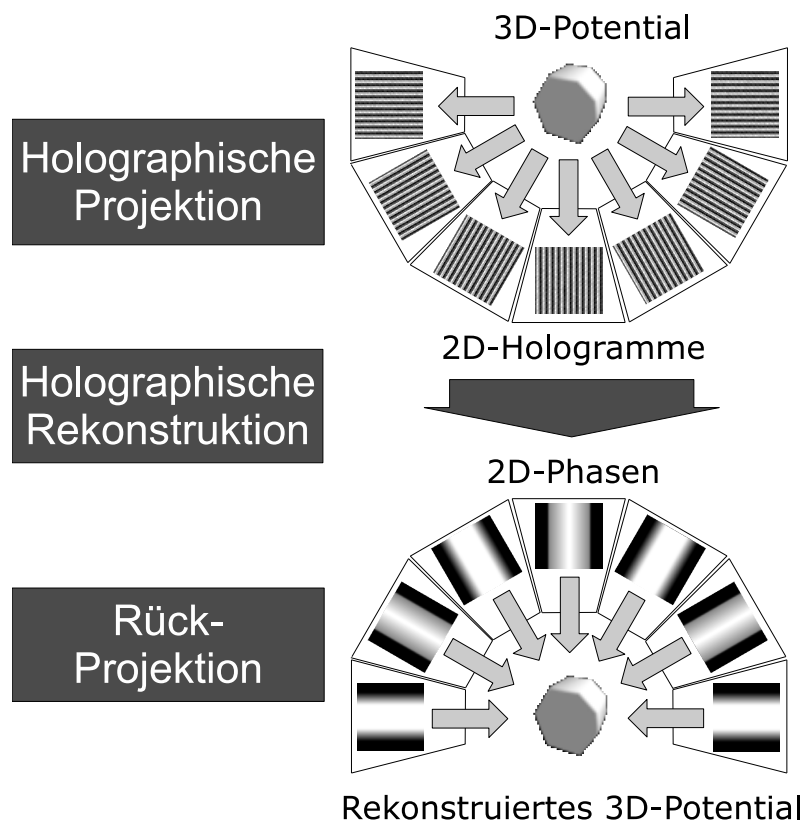


Abbildung 5.1.: Prinzip der Elektronen-Holographischen Tomographie.

Trotz dieses Vorteils wird die EHT derzeit vergleichsweise wenig angewendet. Das belegt auch die relativ geringe Zahl der auf diesem Gebiet bereits vorliegenden Arbeiten, wie zu Beginn dieses Kapitels ausgeführt (Abschn. 5.1). Das Hauptproblem der EHT bestand darin, dass holographische Aufzeichnung und Rekonstruktion der Kippserie rein manuell durchgeführt wurden, und deshalb sehr zeit- und arbeitsaufwendig waren. Zur Lösung dieses Problems wurde zu Beginn dieser Arbeit der Schwerpunkt darauf gelegt, den Prozess der holographischen Aufzeichnung einer Kippserie mithilfe eines selbstentwickelten Softwarepaketes THOMAS in hohem Maße zu automatisieren (Abschn. 5.2). Der Aufwand bei der holographischen Rekonstruktion konnte ebenfalls durch geeignete Prozeduren und Algorithmen signifikant verringert werden (Abschn. 5.3). In diesem Zusammenhang sind neue Prozeduren zur Entfernung von Artefakten in den Elektronenhologrammen, einige Verbesserungen bzgl. der holographischen Rekonstruktion und eine neue Routine für ein besser kontrollierbares (interaktives) Phase-Unwrapping entstanden. Auch die Ausrichtung der Kippserien verlangte neue Methoden, da in vielen Fällen die Standard-Methoden (z.B. Kreuzkorrelation) zur Verschiebungskorrektur nicht ausreichten (Abschn. 5.4). Zur tomographischen Rekonstruktion der Kippserien wurde im Rahmen dieser Arbeit die Gewichtete (Weighted) Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (W-SIRT) basierend auf einer konventionellen SIRT entwickelt (Abschn. 5.5). Die W-SIRT ist der SIRT

bzgl. Konvergenz und Auflösung überlegen. Dennoch besitzen auch die mittels W-SIRT rekonstruierten Verteilungen Artefakte bei Missing Wedge. Diesem Problem kann zumindest bei geeigneten Objekten durch Ausnutzung von deren Symmetrie entgegengewirkt werden (Abschn. 5.5.8). Zum Abschluss dieses Kapitels wird sich mit der Frage beschäftigt, wie stark sich Rauschen und dynamische Streuung in der Phasenkippsreihe auf das daraus rekonstruierte 3D-Potential auswirken.

## 5.1. Vorarbeiten

Die vor Beginn dieser Arbeit bereits existierenden wenigen Untersuchungen zur Elektronenholographischen Tomographie hatten gezeigt, dass es damit prinzipiell möglich ist, sowohl elektrostatische Potentiale [Lai et al. (1994b)] als auch magnetische Felder [Lai et al. (1994a)] in 3D zu rekonstruieren und abzubilden. Obwohl die schon 1994 erzielten Ergebnisse zunächst nur qualitativ den Verlauf der Verteilungen wiedergaben, lassen sich diese beiden Arbeiten als Pionierarbeiten der EHT bezeichnen, da sie die "Machbarkeit" der Methode aufzeigen.

Zehn Jahre später gelangen Friedrich et al. (2004) die erste quantitative 3D-Rekonstruktion der elektrostatischen Potentialverteilung von Magnetiten in einer magnetotaktischen Bakterie. Darin konnte zumindest anhand der Histogramme das Mittlere Innere Potential (MIP) von Magnetit identifiziert werden. In jüngerer Zeit konnte die EHT erfolgreich zur quantitativen 3D-Abbildung von Diffusionspotentialen an *pn*-Übergängen in einem Silizium-Transistor angewandt werden [Twitchett-Harrison et al. (2007, 2008b,a)].

## 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

Alle bisher erzielten Ergebnisse waren durch zeit- und arbeitsaufwendige Einzelerperimente erreicht worden, d.h. jedes der etwa 60-70 Elektronenhogramme pro Kippserie wurde einzeln aufgezeichnet und rekonstruiert. Vor der Aufzeichnung eines Hogramms mussten die erforderlichen zahlreichen Parameter, wie Kippwinkel, Fokus, und Objektposition, manuell eingestellt werden. Die manuelle Vorgehensweise liefert jedoch wegen der langen Aufnahmezeiten (ca. 6-12h pro Kippserie) einerseits, aber auch wegen der subjektiven Komponente bei der Paramtereinstellung andererseits, nur bedingt reproduzierbare und fehlerfreie Ergebnisse, und ist somit zur standardmäßigen Anwendung bzw. für die Lösung schwieriger wissenschaftlicher Fragestellungen nicht geeignet. Erst die weitestgehende Automatisierung bildet die Grundlage dafür, die Grenzen und Möglichkeiten (z.B. laterale Auflösung, Signalauflösung, Präzision) der Methode systematisch zu untersuchen und auf dieser Basis die EHT zu optimieren.

Die in dieser Arbeit erreichten Resultate bzgl. der computergestützten Aufzeichnung einer holographischen Kippserie sind Inhalt dieses Abschnitts. Die Grundlage für die gezielte Computersteuerung des TEM und insbesondere des

TEM-Goniometers ist das Verständnis über deren Aufbau und Wirkungsweise (Abschn. 5.2.1). Bevor jedoch von der Computersteuerung für die Aufzeichnung der holographischen Kippserie Gebrauch gemacht werden kann, müssen zunächst die durch Goniometer (*stage-shift*) und Elektronenstrahl-Ablenkspulen (*image-shift*) induzierten Bewegungen in der Objektebene kalibriert sein (Abschn. 5.2.2). Weiterhin sind der Euzentrische Punkt des Goniometers (Abschn. 5.2.3) und die optimale Position des Leerhologramms (Abschn. 5.2.4) zu bestimmen. Erst nach diesen Vorbereitungen kann die eigentliche computergestützte Aufnahme der holographischen Kippserie durchgeführt werden (Abschn. 5.2.5). Dies geschieht mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Softwarepaket THOMAS, welches eine weitestgehend automatisierte Aufzeichnung gewährleistet (Abschn. 5.2.6).

### 5.2.1. Charakteristik des TEM Goniometers

Bei TEM-Goniometern (*Compustages*) nach aktuellem Stand der Technik wird der Probenhalter (*side entry holder*) seitlich in die Säule eingeführt. Die Goniometer sind so konstruiert, dass alle Bewegungen des Halters in  $\alpha$  (Kippung),  $z$  (Höhe),  $y$  (axial) und  $x$  (lateral)<sup>2</sup> nur durch eine einzige Vorrichtung realisiert werden. Wie bspw. in der Mechanik-Anleitung für Elektronenmikroskope der Philips CM-Serie beschrieben [Philips (1993)], ist die Kippachse durch die imaginäre Linie zwischen zwei festen Lagern (Punkten) gegeben, der hemispherischen Lagermitte (*hemispherical bearing center*) und dem eigentlichen Lager der Kippachse (*tilt axis bearing*).

Im Idealfall schneidet die optische Achse die Kippachse im sogenannten Euzentrischen Punkt: Die Aufzeichnung der Kippserie kann ohne zusätzliche Verschiebungskorrektur zügig durchgeführt werden. Im Normalfall schneidet jedoch die optische Achse die Kippachse nicht, sondern verläuft je nach TEM-Grundjustierung im Abstand von einigen hundert bis tausend Nanometern neben der Kippachse. Beim Philips CM200FEG ST/LL des Triebenberglabors ist im Lorentz-Modus dieser Abstand mit  $x_{mis}^{LL} \approx 50 \mu m$  relativ hoch. Dies resultiert aus dem Abstand  $x_{mis}^{LL}$  zwischen beiden optischen Achsen von Lorentzlinse und üblicherweise benutzter SuperTwin-Objektivlinse, wobei für die SuperTwin-Objektivlinse  $x_{mis}^{ST} < 1 \mu m$  gilt.

Wie die Abbildung 5.2 zeigt, entspricht der Abstand  $x_{mis}$  dem Radius der Kreisbahn, auf dem sich die abzubildende Probenstelle bei Kippung bewegt. Basierend auf oben genannter Definition,  $y$ -Achse gleich der Kippachse, erfolgt die kreisförmige Bewegung in der  $(x, z)$ -Ebene. Sobald ein TEM Goniometer reproduzierbar diese Charakteristik aufweist<sup>3</sup>, kann die  $(x, z)$ -Verschiebung bei  $\alpha$ -Kippung vorherberechnet werden [Ziese et al. (2002); Zheng et al. (2004)]. Für die Compustage des Philips CM200FEG ST/LL wurde dieses Verhalten anhand der ausgelesenen  $(x, z)$ -Positionen einer experimentellen Kippserie verifiziert (Abb. 5.2

---

<sup>2</sup>Bei Philips und FEI Elektronenmikroskopen wird die axiale Richtung mit  $x$  und die laterale mit  $y$  bezeichnet. Um jedoch konsistent mit den im Abschnitt 4.1 eingeführten Koordinaten zu bleiben sind hier  $x$  und  $y$  vertauscht.

<sup>3</sup>Leider ist dies nicht immer der Fall, s. z.B. Mastronarde (2005).



## 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

B), wobei der Radius dem oben erwähnten Wert von  $x_{mis} \approx 50 \mu m$  entspricht. Darauf basierend konnte eine verlässliche, automatische Verschiebungskorrektur während der Aufzeichnung einer Kippserie realisiert werden, welche in den folgenden Abschnitten erläutert wird.

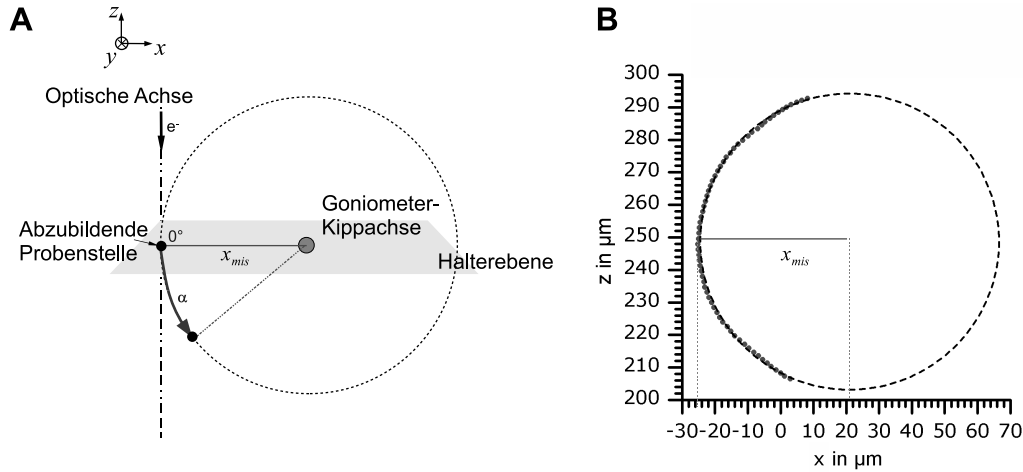


Abbildung 5.2.: Probenbewegung bei Kippung durch TEM-Goniometer.

**A:** Die Bewegung der abzubildenden Probenstelle infolge der Kippung um den Winkel  $\alpha$  kann durch eine Kreisbahn beschrieben werden. Der Radius des Kreises ist durch den Abstand  $x_{mis}$  zwischen optischer Achse und mechanischer Kippachse des Goniometers gegeben.

**B:** Die  $(x, z)$ -Positionen der Probenstelle einer im Philips CM200FEG ST/LL experimentell aufgenommenen Kippserie (Punkte) und der Fit (gestrichelte Linie) zeigen die Gültigkeit des geometrischen Modells (A).

### 5.2.2. Kalibrierung

Voraussetzung für eine gezielte Bewegung der Probe mithilfe des Computers ist die Kenntnis, wie sich die induzierten Bewegungen durch Goniometer (*stage-shift*) oder Elektronenstrahl-Ablenkspulen (*image-shift*) in der Objektebene auswirken. Zum Gewinnen dieser Information werden die aus *stage-* und *image-shift* resultierenden Verschiebungsvektoren in den bzgl. der Vergrößerung kalibrierten Abbildungen auf der CCD Kamera ausgewertet. Das Ergebnis dieser Auswertung ist ein Kalibrierungsvektor  $k_s \hat{e}$ , bei welchem  $k_s$  die Stärke und  $\hat{e} = (e_x, e_y)$  die Richtung der Bewegung des zu kalibrierenden Elements angibt.

Die vollautomatische Kalibrierungsprozedur, welche in dieser Arbeit entwickelt wurde, beinhaltet die folgenden Schritte:

## 5. Holographische Tomographie

1. Aufzeichnung mehrerer, mithilfe des zu kalibrierenden Elements (z.B. *stage-shift* in  $x$ -Richtung) zueinander verschobener TEM-Abbildungen auf der CCD-Kamera (Abbildung 5.3, A).
2. Bestimmung der Verschiebungen zwischen den TEM-Abbildungen mittels Kreuzkorrelation.
3. Analyse der Beträge der Verschiebungsvektoren in Abhängigkeit von den am kalibrierenden Element abgelesenen Werten.<sup>4</sup> Der Anstieg der durch Lineare Regression ermittelten Geraden entspricht dem Kalibrierungsfaktor  $k_s$ . Für das in Abb. 5.3 (B) gezeigte Beispiel wurde  $k_s = 0.93$  für die *x-stage-shift* ermittelt<sup>5</sup>.
4. Analyse der Verschiebungsvektoren bzgl. der Kamera-Achsen  $x_{CCD}$  und  $y_{CCD}$ . Der Anstieg  $m$  der durch Lineare Regression ermittelten Geraden wird zur Berechnung der Komponenten  $e_x = (1 + m^2)^{-\frac{1}{2}}$  und  $e_y = (1/m^2 + 1)^{-\frac{1}{2}}$  des Richtungsvektors  $\hat{e}$  benutzt (Abb. 5.3 C).
5. Speichern der Kalibrierungsdaten  $k_s$  und  $\hat{e}$  in einem Template, das später zur Korrektur von Verschiebungen des Objektes mithilfe von *stage-* oder *image-shift* verwendet wird.

Aufgrund der durch die magnetischen Linsen verursachten Bilddrehung muss die Kalibrierungsprozedur für jede Vergrößerung gesondert durchgeführt und gespeichert werden.

### 5.2.3. Bestimmung des Euzentrischen Punktes und z-Korrektur in die Euzentrische Höhe

Wie in Abschnitt 5.2.1 bereits beschrieben, bewegt sich das abzubildende Objekt infolge der  $\alpha$ -Kippung des Goniometers auf einer Kreisbahn. Der Radius dieser Kreisbahn ist einerseits durch den lateralen Abstand zwischen optischer Achse und Kippachse (bei Philips (1993) *Tilt error*)  $x_{mis}$ , und andererseits durch den vertikalen Abstand zwischen Halterebeine und Kippachse (bei Philips (1993) *Height error*)  $z_{mis}$  gegeben (Abb. 5.4 oben). Die Projektion der Kreisbewegung ergibt in der Bildebene eine Verschiebung  $\Delta x$  entlang einer Linie senkrecht zur Kippachse (s. Abb. 5.4 blau).  $\Delta x$  lässt sich bezüglich des Kippwinkels  $\alpha$  in eine symmetrische  $\Delta x_{sym}(\alpha)$  (s. Abb. 5.4 grün) und eine antisymmetrische  $\Delta x_{asym}(\alpha)$  (s. Abb. 5.4 rot) Verschiebung unterteilen. Um die durch  $\alpha$ -Kippung induzierte Bewegung in der Bildebene zu minimieren, sollte  $x_{mis}$  und  $z_{mis}$  möglichst klein sein.  $x_{mis}$  kann anhand der *image-shift*, d.h. durch Schieben der optischen Achse in Richtung der Kippachse verringert werden. Das hat jedoch den Nachteil, dass aufgrund der dafür notwendigen

---

<sup>4</sup>Bei der *stage-shift* werden diese Werte direkt von der Compustage in  $\mu\text{m}$  ausgelesen, bei der *image-shift* sind diese Werte in Einheiten von ADU (Arbitrary Digital Unit).

<sup>5</sup>Bei perfekter Kalibrierung der Vergrößerung auf der CCD und der Compustage wäre idealerweise dieser Faktor 1.

## 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

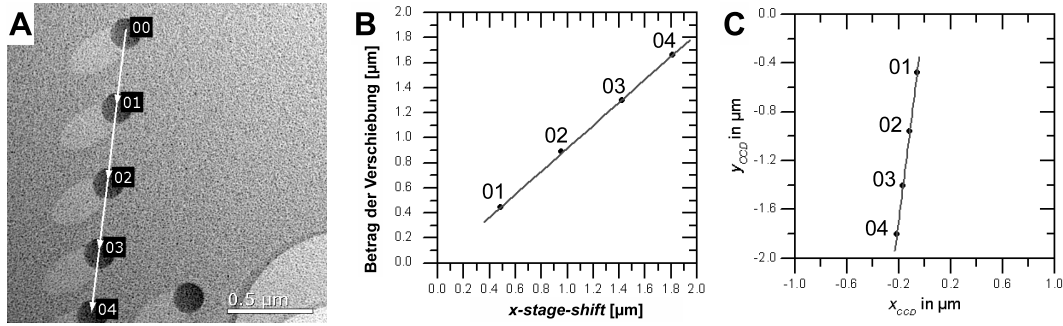


Abbildung 5.3.: Kalibrierung der Schiebung entlang der  $x$ -Achse des Goniometers ( $x$ -stage-shift).

**A:** Überlagerung von fünf durch  $x$ -Schiebung zueinander verschobenen Abbildungen einer Latexkugel auf Kohlefolie.

**B:** Betrag der resultierenden Verschiebungsvektoren als Funktion der induzierten  $x$ -Schiebung. Der Anstieg der durch Lineare Regression ermittelten Geraden entspricht den Kalibrierungsfaktor  $k_s$ .

**C:** Verschiebungsvektoren bzgl. der Kamera-Achsen  $x_{CCD}$  und  $y_{CCD}$ . Der Anstieg  $m$  der durch Lineare Regression ermittelten Geraden wird zur Berechnung des Richtungsvektors  $\hat{e}$  benutzt.

Strahlkippung zusätzliche Aberrationen der Objektivlinse (Lorentzlinse) induziert werden. Somit ist dieser Ansatz nur begrenzt sinnvoll. Dagegen lässt sich  $z_{mis}$  relativ einfach durch Schieben der Halterebeine entlang der  $z$ -Richtung in die Ebene der Kippachse korrigieren. Dieser Vorgang gehört zur standardmäßigen TEM-Justierung und wird “Einstellen der Euzentrischen Höhe” genannt.

Durch Analyse der symmetrischen und antisymmetrischen Verschiebung in der Bildebene ist es möglich, die Werte für  $x_{mis}$  und  $z_{mis}$  zu bestimmen. Dazu wird mit der Aufzeichnung einer kleinen Kippserie begonnen (Abb. 5.5 A). Die Verschiebungsvektoren werden dann mittels Kreuzkorrelation gemessen, und die  $x$ -Komponenten  $\Delta x(\alpha)$  in einem symmetrischen Anteil

$$\Delta x_{sym}(\alpha) = (\Delta x(+\alpha) + \Delta x(-\alpha)) / 2 \quad (5.1)$$

und einem antisymmetrischen Anteil

$$\Delta x_{asym}(\alpha) = (\Delta x(+\alpha) - \Delta x(-\alpha)) / 2 \quad (5.2)$$

zerlegt.

Abbildung 5.4 verdeutlicht, dass für symmetrische Verschiebungen

$$\Delta x_{sym}(\alpha) = x_{mis} \cdot (1 - \cos(\alpha)) \quad (5.3)$$

gilt. Demzufolge kann der Wert für  $x_{mis}$  aus dem Anstieg der linearen Regression von  $\Delta x_{sym}(\alpha)$  und  $(1 - \cos(\alpha))$  gewonnen werden (Abb. 5.5 C, rot). Für

## 5. Holographische Tomographie

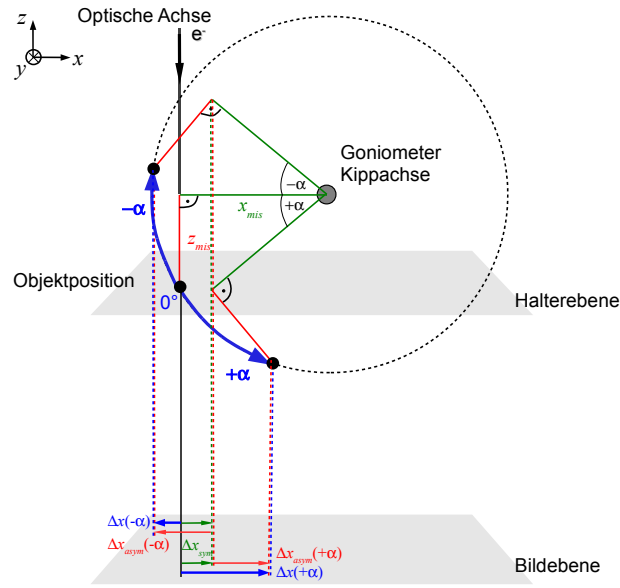


Abbildung 5.4.: Bewegung der Probenstelle in der Bildebene infolge der mechanischen Fehler des Goniometers  $x_{mis}$  und  $z_{mis}$ .

antisymmetrische Verschiebungen gilt hingegen der Zusammenhang

$$\Delta x_{asym}(\alpha) = z_{mis} \cdot \sin(\alpha). \quad (5.4)$$

Aus dem Anstieg der linearen Regression von  $\Delta x_{asym}(\alpha)$  und  $(\sin(\alpha))$  ergibt sich  $z_{mis}$  (vgl. Abb. 5.5 C, schwarz).

Mit der Compustage wird die Probe um  $-z_{mis}$  in die euzentrische Höhe geschoben. Ob sich danach tatsächlich die Probe in der Euzentrischen Höhe befindet, lässt sich durch Aufzeichnung und Auswertung einer zweiten kleinen Kippserie prüfen. Bei dem Beispiel in der Abbildung 5.4 ist dies der Fall, wie (B) und (C) veranschaulichen: Die symmetrischen Verschiebungen bleiben zu denen in der ersten Kippserie unverändert (roter Graph in C), während die antisymmetrischen Verschiebungen wegen  $z_{mis} \approx 0$  praktisch verschwinden (schwarzer Graph in C).

Die auf diese Weise realisierte Positionierung der Probe in die Euzentrische Höhe und die Kenntnis des Wertes für  $x_{mis}$  sind für die spätere automatische Korrektur der Verschiebungen bei der Aufnahme einer Kippserie unabdingbar.

### 5.2.4. Optimale Position des Leerhologramms

Wegen der in Abschnitt 3.3 angegebenen Probleme besteht die Notwendigkeit in der Elektronenholographie zusätzlich zum Objekthologramm ein Leerhologramm aufzuzeichnen. Dabei spielt es zunächst keine Rolle, an welcher Stelle innerhalb eines objektfreien Bereichs das Leerhologramm aufgezeichnet wird. Falls die Probe jedoch elektrostatische oder magnetische Streufelder besitzt, können diese auch die Referenzwelle beeinflussen [Matteucci et al. (1991); Kou und Chen (1995)]. Die

## 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

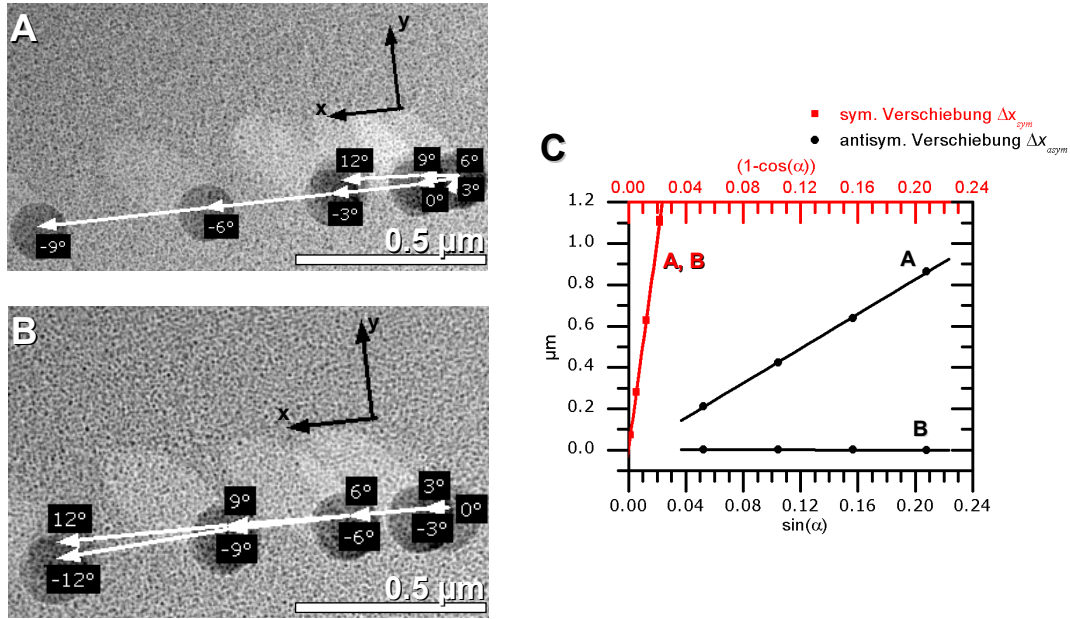


Abbildung 5.5.: Prozedur zur Bestimmung des Euzentrischen Punktes.

**A, B:** Überlagerung der Einzelbilder (Ausschnitte) einer kleinen Kippserie ( $\pm 12^\circ$  in  $3^\circ$  Schritten) (A) vor und (B) nach  $z$ -Korrektur in die Euzentrische Höhe.

**C:** In den vier Graphen für die symmetrische und antisymmetrische Verschiebung  $\Delta x_{sym}$  (rot) und  $\Delta x_{asym}$  (schwarz) liefert der Anstieg laut Gl. 5.3 und 5.4 jeweils  $x_{mis}$  und  $z_{mis}$ . Während  $x_{mis}$  in (A) und (B) vor und nach der  $z$ -Korrektur konstant bleibt, ist  $z_{mis}$  nach der Korrektur praktisch Null, d.h. die Probe ist in der Euzentrischen Höhe.

damit verbundenen Phasenmodulationen führen zu unerwünschten Beiträgen in der holographisch rekonstruierten Objektphase. Um diese Artefakte zu beseitigen, muss das Leerhologramm in dem Gebiet aufgezeichnet werden, in dem sich zuvor die Referenzwelle bei der Aufzeichnung des Objekthologramms befand. Somit gelingt es bei der darauffolgenden Rekonstruktion mit Leerhologramm die Beiträge der Referenzwelle in der Objektphase durch Subtraktion der Leerphase<sup>6</sup>, welche die selben Beiträge enthält, zu entfernen.

Für die Bestimmung des Gebietes der Referenzwelle wurde eine Methode entwickelt, deren Hauptpunkte im folgenden kurz erläutert werden:

1. Aufnahme des Objekthologramms bei Position  $p$  (Abb. 5.6, A). Objekt- und Referenzwelle haben den zu bestimmenden Abstand  $d$ . Dieser hängt von der Biprisma-Fadenspannung und dem Abstand Biprisma zu erster Zwischenbildebene ab.
2. Verschieben der Probe und Aufnahme eines zweiten Objekthologramms (Abb. 5.6, B) bei Position  $p - d$ . Das Objekt wird so verschoben, dass es zum zweiten Mal im Gesichtsfeld auftaucht, sich nun also in der vorherigen Referenzwelle befindet. Dies ist genau bei der Position  $p - d$  der Fall. Aus den beiden Positionen  $p$  und  $p - d$ , deren Werte einfach an der Compustage abgelesen werden können, wird der Abstand  $d$  zwischen Objekt- und Referenzwelle berechnet.
3. Aufnahme des Leerhologramms bei Position  $p + d$  (Abb. 5.6, C). Damit werden von langreichweitigen Feldern herrührende Phasenmodulationen in der Objektwelle bei der holographischen Rekonstruktion mit diesem Leerhologramm automatisch korrigiert.

Die Genauigkeit dieses Verfahrens hängt zum einen von der Genauigkeit des TEM-Goniometers ab, und zum anderen davon, ob die langreichweitigen Felder nach einem Abstand von  $2d$  hinreichend abgeklungen sind. Trifft letzteres nicht zu, so ist wiederum die Referenzwelle des Leerhologramms moduliert. Trotz dieser Einschränkung ist diese Position zur Vermeidung von Artefakten die optimale Position zur Aufzeichnung des Leerhologramms.

### 5.2.5. Computergestützte Aufzeichnung

Die Aufnahme der holographischen Kippserie wird mithilfe der eigens dafür entwickelten Software THOMAS durchgeführt, deren Programmstruktur, Softwareschnittstelle zum TEM und Benutzeroberfläche im folgenden Abschnitt 5.2.6 noch näher erläutert wird. Hier wird zunächst prinzipiell auf die wesentlichen (in THOMAS realisierten) Schritte für die Aufzeichnung einer Kippserie eingegangen.

Nach den Vorbereitungen (Abschnitte 5.2.2-5.2.4) folgt die eigentliche Aufzeichnung der holographischen Kippserie. Dabei ist es sinnvoll, die Kippserie

---

<sup>6</sup>Leerphase ist die Phase die aus dem Leerhologramm rekonstruiert wird.

## 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

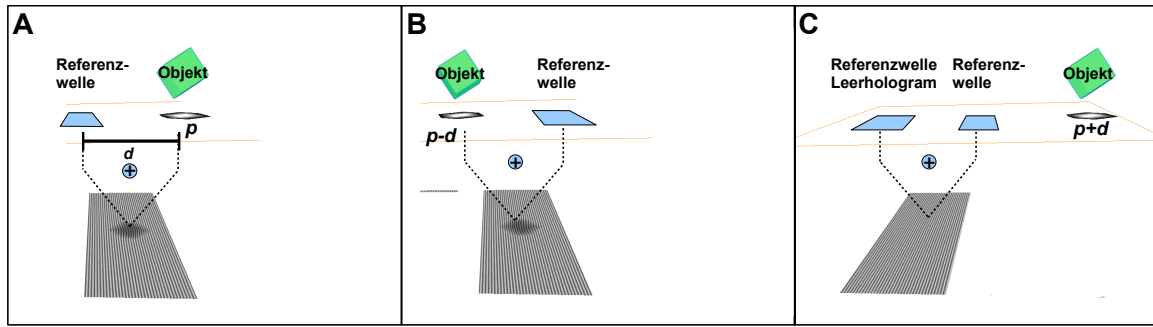


Abbildung 5.6.: Verfahren zur Bestimmung der optimalen Position des Leerhologramms.

**A:** Aufnahme des Objekthologramms bei Position  $p$  (Referenzwelle links).

**B:** Aufnahme eines zweiten Objekthologramms bei Position  $p - d$  (Referenzwelle rechts).

**C:** Aufnahme des Leerhologramms bei Position  $p + d$ .

entweder mit dem maximalen oder dem minimalen Kippwinkel zu beginnen, um Ungenauigkeiten bei Richtungswechsel bzgl.  $\alpha$  durch mechanisches Spiel des Goniometers (*backlash*) zu vermeiden. Außerdem zeigt sich erst bei hohen Kippwinkeln, ob das Objekt geeignet ist und nicht abgeschattet wird.

Nach Aufnahme des ersten Objekthologramms wird die Probe automatisch zur optimalen Position des Leerhologramms verschoben, danach das Leerhologramm aufgezeichnet, und schließlich wieder zurück zur Objektposition geschoben. Bei darauffolgender Kippung muss die Position des Objektes wegen des endlichen Abstandes zwischen Kippachse und optischer Achse  $x_{mis}$  und der daraus resultierenden Verschiebung in der Bildebene korrigiert werden<sup>7</sup>.

Für die Verschiebungskorrektur werden die Werte  $\Delta x'$  und  $\Delta z'$  aus dem Abstand  $x_{mis}$  und den beiden Gleichungen

$$\Delta x'(\alpha) = x_{mis} \cdot (1 - \cos(\alpha)) \quad (5.5)$$

und

$$\Delta z'(\alpha) = x_{mis} \cdot \sin(\alpha) \quad (5.6)$$

berechnet. Wie in Abb. 5.7 dargestellt, wird dadurch die Objektstelle um  $\Delta x'$  und  $\Delta z'$  entlang der gekippten  $x'$ - und  $z'$ -Achsen des Goniometers wieder zur optischen Achse in die Objektebene geschoben. In diesem Schritt wird nicht nur die laterale Verschiebung korrigiert, sondern auch wieder auf das Objekt fokussiert. Diese

<sup>7</sup>Vor allem beim Philips CM200FEG ST/LL im Lorentz-Modus ist eine Korrektur unabdingbar, da der überaus hohe Wert von  $x_{mis} \approx 50\mu\text{m}$  zu großen Verschiebungen in der Bildebene führt. Zum Beispiel würde eine Kippung von  $68^\circ$  zu  $70^\circ$  nach Gleichung 5.1 einer Verschiebung von  $1.6\mu\text{m}$  entsprechen. Da dies ungefähr die doppelte Breite des Gesichtsfeldes der CCD-Kamera bei üblichen Vergrößerungen ist, wäre das Objekt aus dem Gesichtsfeld verschwunden.

## 5. Holographische Tomographie

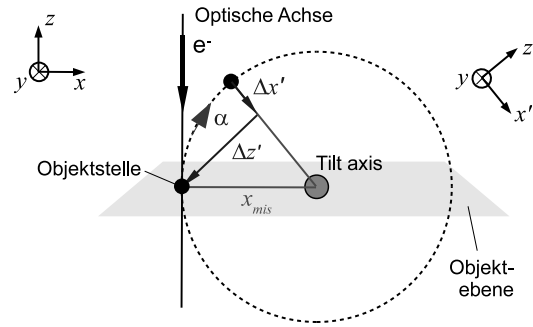


Abbildung 5.7.: Korrektur der durch  $\alpha$ -Kippung induzierten Bewegung. Die Objektstelle wird nach Kippung automatisch entlang der gekippten  $x'$ - und  $z'$ -Achsen des Goniometers um  $\Delta x'$  und  $\Delta z'$  wieder zur optischen Achse in die Objektebene geschoben.

Defokuskorrektur ist bei den hier benutzten Vergrößerungen hinreichend präzise, weshalb die Benutzung einer Autofokus-Routine [Koster et al. (1987)] bislang noch nicht notwendig wurde.

Um die gewünschte Position auf wenige Pixel genau zu erreichen, reicht wegen der begrenzten Präzision und Reproduzierbarkeit des Goniometers i. d. R. dieser erste Korrekturschritt nicht aus. Deshalb ist es erforderlich, die restliche Verschiebung zwischen dem Hologramm der aktuellen Kippung und dem der vorherigen Kippung zu bestimmen, und entweder mit *stage-* oder *image-shift* zu korrigieren. Die Bestimmung der Objektverschiebung mittels Kreuzkorrelation der Hologramme schlägt jedoch fehl, da die Interferenzstreifen die Objektstruktur überlagern (Abschn. 4.5.1). Aus diesem Grund wird die Kreuzkorrelation auf die Amplituden-, Phasen- oder Intensitätsbilder angewandt, die zuvor aus den Hologrammen rekonstruiert wurden. Die dabei ermittelten Verschiebungen werden anhand der Kalibrierungswerte (Abschnitt 5.2.2) in *stage-* oder *image-shift* Einheiten umgerechnet. Kleinere Verschiebungen ( $< 100 \text{ nm}$ ) müssen mit *image-shift* korrigiert werden, größere können noch mit der Compustage korrigiert werden.

Alternativ zur Kreuzkorrelation kann eine sogenannte “Center Detail”-Routine Nickell et al. (2005) benutzt werden, bei der ein gewünschter Bildpunkt zunächst markiert, und dann in die Mitte des Bildes geschoben wird. Um Zeit bei der Positionierung (*tracking*) zu sparen, können gegebenenfalls kürzere Belichtungszeiten bei gleichzeitig höherem Kamera-Binning gewählt werden.

Durch gegebenenfalls mehrmalige Anwendung dieser Hilfsmittel hat das Objekt schließlich die gewünschte Position erreicht, und das Hologramm kann aufgezeichnet und dem Objekthologramm-Stapel hinzugefügt werden. Anschließend wird die Probe wieder automatisch zur Position des Leerhologramms verschoben, das Leerhologramm aufgezeichnet (Abschnitt 5.2.4), und dem Leerhologramm-Stapel hinzugefügt. Auf diese Weise wird eine Kippserie von Objekt- und Leerhologrammen generiert.



### 5.2.6. THOMAS

#### Motivation

Trotz existierender (und teilweise auch frei zugänglicher) Tomographie-Softwarepakete (ein Großteil davon ist in Abschnitt 4.4 aufgelistet) ließ sich keines davon direkt auf das Problem der EHT anwenden, da mindestens eine der folgenden Anforderungen nicht erfüllt ist:

1. Schnittstelle zu einem Philips CM200FEG ST/LL TEM mit Lorentzlinse: Die Lorentzlinse ist notwendig, weil sie ein hinreichend großes Hologrammgesichtsfeld von ca.  $1\mu\text{m}$  bietet.
2. Korrektur der durch Kippung induzierten Verschiebungen, die im Lorentz-Modus um mindestens den Faktor 10 höher sind als im Normal-Mode<sup>8</sup>.
3. Spezielle Routinen für die im Vergleich zu TEM Abbildungen um einiges kompliziertere Aufzeichnung von Hologrammen.
4. Automatische Aufnahme von je einem zusätzlichen Leerhologramm, welches zur Beseitigung von Artefakten in der rekonstruierten Phase notwendig ist.

Zu Beginn der Arbeit wurden Anstrengungen unternommen, die in MATLAB (The MathWorks, USA) für TEMs vom Typ FEI Tecnai oder Polara implementierte *TOM software toolbox* [Nickell et al. (2005)] über ein in Visual C++ für ein Jeol 3000F TEM implementiertes *COM-interface module* [Verbeeck und Bals (2006)] auf das Philips CM200FEG ST/LL TEM, welches lediglich eine Schnittstelle zu DigitalMicrograph (Gatan Inc., Pleasanton, USA) besitzt, zu adaptieren. Die Anstrengungen, drei verschiedene Programme zu vereinen, welche in drei verschiedenen Programmiersprachen für drei verschiedene Elektronenmikroskope geschrieben wurden, führten nach sechs Monaten lediglich zu dem "Erfolgsergebnis", die Position der Compustage des Philips CM200 mithilfe der *TOM software toolbox* auslesen zu können. Währenddessen stellte sich jedoch mehr und mehr heraus, dass an der komplexen, für die Zwecke der Cryo-ET entwickelten *TOM software toolbox* tiefgreifende Veränderungen hätten durchgeführt werden müssen, um den oben formulierten vier Anforderungen für die EHT zu genügen. Da der Aufwand dafür nicht überschaubar war, wurde dieser Weg verworfen.

Stattdessen wurde ein eigenes Tomographie-Softwarepaket für DigitalMicrograph (DM) von Grund auf neu entwickelt und in DM-Skriptsprache implementiert. Die Software erhielt den Namen THOMAS, was für "Tomographic and Holographic Microscope Acquisition Software", steht. Die Entwicklungszeit bis zur ersten lauffähigen Version dauerte ca. zwei Monate. Danach wurde die Software durch Tests fortlaufend optimiert, erweitert, und von Fehlern befreit. Die Möglichkeit, die Software bei Bedarf zu verbessern, war von entscheidender Bedeutung für die erfolgreiche Entwicklung der ganzen EHT. THOMAS erfüllt die obigen

---

<sup>8</sup>Wie bereits oben erwähnt, verläuft die optische Achse der Lorentzlinse ca.  $50\mu\text{m}$  neben der Kippachse des Goniometers.

Anforderungen für die computergesteuerte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie im Lorentzmodus.

Wie in THOMAS die TEM-Steuerung realisiert wird, wie die Software generell strukturiert ist, und wie die Funktionalität über die Benutzeroberfläche dem Operator bereitgestellt wird, ist im folgenden erläutert.

### TEM-Steuerung

Grundlage für die Automatisierung ist die Möglichkeit, per Computer das Elektronenmikroskop zu steuern. Dafür benötigt man im wesentlichen zwei Schnittstellen, eine zwischen Computer und TEM und eine zwischen Computer und CCD Kamera. Erstere dient bspw. der Steuerung der Probe oder des Elektronenstrahls per Computer (*stage-*, *image-shift*), während letztere u. a. die Auswertung der im TEM aufgezeichneten Daten mittels einer Bildverarbeitungssoftware ermöglicht. DigitalMicrograph (DM) der Firma Gatan bietet dafür eine geeignete Plattform, da über eine Reihe von Skript-Funktionen verschiedenste Kamera- und Elektronenmikroskoptypen einfach gesteuert werden können. Die Funktionalität wird dabei über sogenannte Plug-Ins entweder in Form von dynamischen Bibliotheken, (dll-Dateien) oder in Form von DM-Skriptpaketen (gtk-Dateien) bereitgestellt. Die Skript-Funktionen zur TEM Steuerung übernehmen die Aufgabe, anhand spezieller Protokolle über die jeweilige Schnittstelle zu kommunizieren. Dies erfolgt bei den schon etwas betagteren Elektronenmikroskopen der CM-Serie von Philips mithilfe des von Philips entwickelten *SECS2* Protokolls und über eine serielle (9-polige) Schnittstelle *RS232*. Dagegen wird bei moderneren Elektronenmikroskopen, z.B. bei den Tecnai oder Polara der FEI Company (Eindhoven, Niederlande) eine Windows-interne Software-Schnittstelle, das sogenannte *COM interface* (Compound Object Model, Microsoft, Richmond, USA) verwendet. Die für normale TEM-Steuerung notwendige Datenmenge ist jedoch so gering, dass auch die für heutige Verhältnisse recht langsame *RS232* Verbindung (Baudrate = 9600 baud) zur Steuerung von Philips CMs vollkommen ausreicht.

### Struktur

Die Implementierung der Software orientierte sich an dem Prinzip der Zerlegung des komplexen Problems in mehrere kleinere, weniger komplexe Teilprobleme und der anschließenden separaten Lösung. Die Lösung dieser Teilprobleme erfolgt objektorientiert in Form von Modulen, Klassen und Funktionen. Die Vorteile dieses Prinzips sind ein übersichtlicherer Quelltext, damit verbunden eine leichtere Wartung, und eine flexiblere Anwendung zur Lösung von ähnlichen Problemen.

Die THOMAS-Software untergliedert sich in zwei Hauptteile, die aus der strikten Trennung zwischen den methodischen Problemen der Aufzeichnung einer Kippserie und den mikroskopspezifischen Problemen resultieren. Letztere Probleme sind im Modul *em\_remote* zusammengefasst, während die methodischen Probleme (z.B. Kalibrierung, Bestimmung des Euzentrischen Punktes, etc.) im Modul

### 5.2. Computergestützte Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

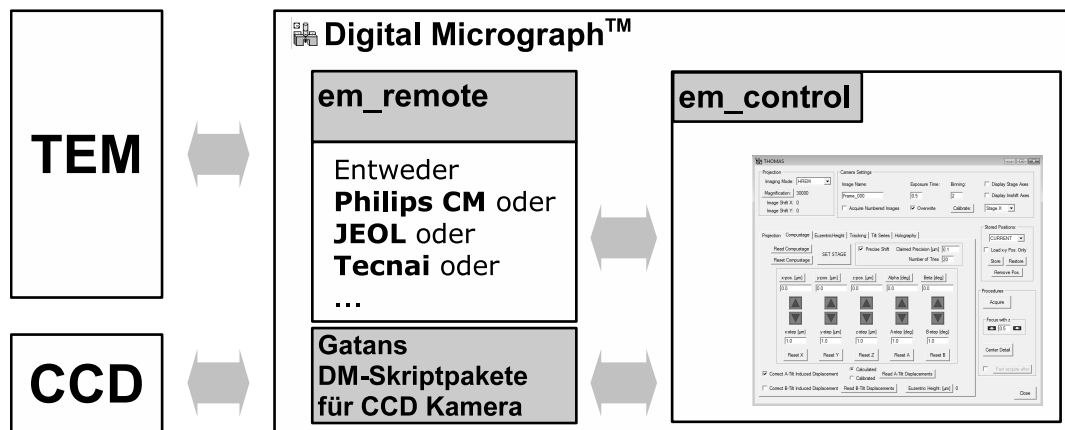


Abbildung 5.8.: Software-Struktur von THOMAS. Diese besteht aus zwei Hauptmodulen: *em\_control* und *em\_remote*. Dabei fungiert das an den TEM-Typ angepasste *em\_remote* Modul als Schnittstelle zwischen TEM und *em\_control*, und das an den Kameratyp angepasste DM-Skriptpaket der Firma Gatan als Schnittstelle zwischen CCD-Kamera und *em\_control*.

*em\_control* vereint werden. Die Module selbst bestehen wiederum aus Klassen und Funktionen. Wie in Abb. 5.8 skizziert, agiert *em\_remote* als Schnittstelle zwischen TEM und *em\_control* durch Konvertieren von mikroskopspezifischen Funktionen (z.B. `Tecnai_SetStageX()`) in allgemeine Funktionen (z.B. `SetStageX()`). Da alle Funktionen des *em\_control*-Moduls nur die allgemeinen Funktionen (wie `SetStageX()`) benutzen, ist es möglich, THOMAS ohne größeren Aufwand auch auf andere Elektronenmikroskope zu adaptieren. Zu diesem Zweck muss lediglich das im Vergleich zu *em\_control* bedeutend weniger umfangreiche *em\_remote* Modul modifiziert werden. Im obigen Beispiel müsste man die Funktion `Tecnai_SetStageX()` durch die Funktion `EMSetStageX()` in *em\_remote* ersetzen, um THOMAS statt an einem Tecnai an einem Philips CM zu benutzen, wogegen *em\_control* unverändert bliebe<sup>9</sup>.

Dank dieser Software-Architektur konnte in recht kurzer Zeit THOMAS an vier verschiedene TEM-Typen angepasst werden. Nach Adaption an das Philips CM und das FEI Tecnai des Triebenberglabors folgte im Rahmen des europäischen ESTEEM Projektes in Zusammenarbeit mit Dr. J. Verbeeck die Anpassung an das JEOL 3000F des Elektronenmikroskopie-Zentrums EMAT der Universität Antwerpen (Belgien). Während eines zweiwöchigen Aufenthaltes am „National Center for Electron Microscopy“ (NCEM) in Berkeley, USA, entstand eine weitere Kooperation im Rahmen des amerikanischen TEAM-Projektes<sup>10</sup>. In diesem

<sup>9</sup>In diesem Zusammenhang lassen sich auch bestimmte Eigenheiten der einzelnen TEM-Typen recht einfach berücksichtigen, z.B. sind bei JEOL TEMs  $x$ - und  $y$ -Richtung vertauscht.

<sup>10</sup><http://ncem.lbl.gov/TEAM-project/>

## 5. Holographische Tomographie

Zeitraum wurde THOMAS so modifiziert, damit es ein völlig neu entwickeltes, Piezo-getriebenes und deshalb sub-nm-präzises TEM-Goniometer (*piezostage*, [Schmid et al. (2007)]) steuern kann.

### Benutzeroberfläche

Die THOMAS-Benutzeroberfläche (Abb. 5.9) wurde speziell an die Bedürfnisse bei der Aufnahme einer holographischen Kippserie angepasst. Dennoch ist es ohne weiteres möglich, statt einer holographischen auch eine BFTEM-Kippserie damit aufzuzeichnen.

Die Benutzeroberfläche ist im Wesentlichen in zwei Bereiche gegliedert, einem permanenten Bereich (oben und rechts) und einem Bereich, bei dem durch entsprechende Reiter (*tabs*) verschiedenste Operationen ausgeführt werden können (Tab-Bereich).

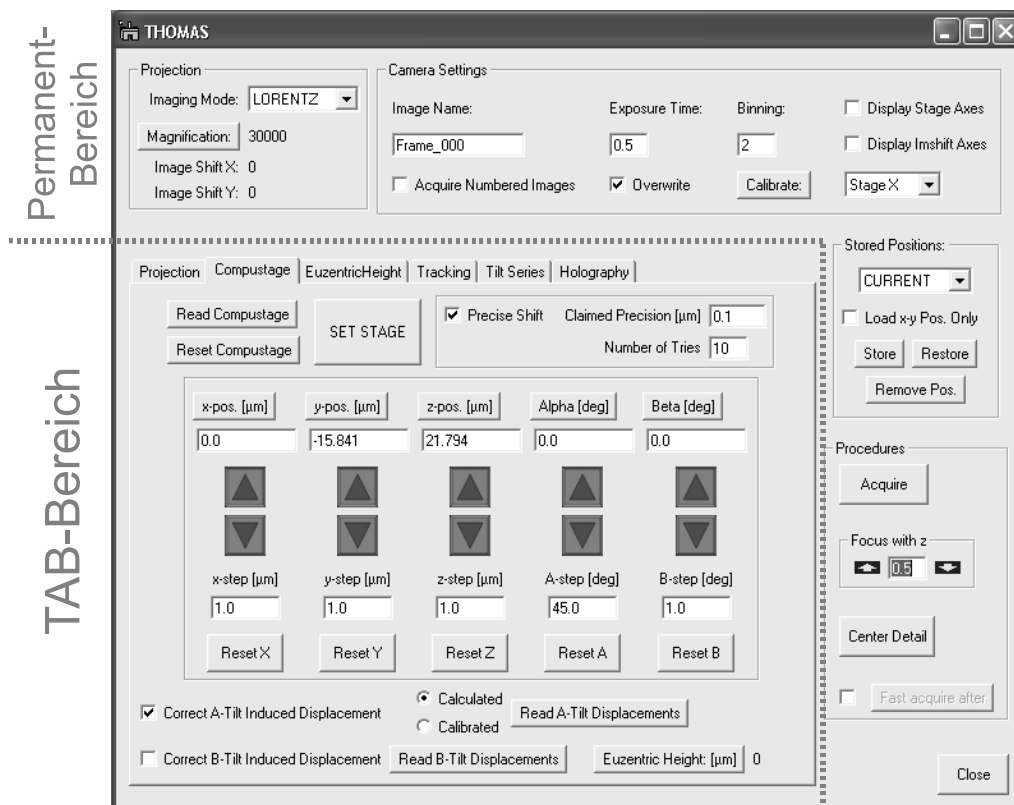


Abbildung 5.9.: THOMAS Benutzeroberfläche. (Details s. Text)

Der Permanentbereich enthält Kontrollflächen für häufig zu benutzende oder allgemeine Aufgaben, wie Kameraeinstellungen, Kalibrierung von *stage*- und *image-shift*, Starttaste für CCD-Aufnahme, Starttaste für Center-Detail Routine und ein Speicherregister für Probenpositionen. In letzterem können beliebig viele Positionen unter einem beliebigen (die Objektstelle beschreibenden) Namen gespeichert und wieder abgerufen werden.

Der Tab-Bereich verfügt über die sechs Reiter:

- **Projection:** Zur Änderung von *image-shift* und dessen Kalibrierung. In Planung sind Steuerung von *beam-shift* und Intensität der Beleuchtung.
- **Compustage** (s. Abb. 5.9): Zur Bewegung und Kippung der Probe mit dem Goniometer. Bei  $\alpha$ -Kippung kann die Verschiebungskorrektur ein- oder ausgeschaltet werden (Abschnitt 5.2.5), welche auch anhand der Werte einer bereits aufgezeichneten Kippserie vorgenommen werden kann (ähnlich der Vorkalibrierung bei Ziese et al. (2002)). Des Weiteren ist es möglich, für die  $x$ -,  $y$ -Schiebung eine bestimmte Präzision (z.B.  $0.1\ \mu\text{m}$ ) und die Anzahl der Versuche für das Erreichen einer gewünschten Position vorzugeben.
- **Euzentricity:** Zur Ausführung der in Abschnitt 5.2.3 erläuterten Prozedur. Die wichtigen Größen  $x_{mis}$  und Euzentrische Höhe werden ermittelt und gespeichert.
- **Tracking:** Zur Korrektur der Restverschiebungen zwischen zwei Abbildungen mithilfe der Kreuzkorrelation. Die ermittelten Driftwerte in Pixel werden in Einheiten von *stage*- und *image-shift* umgerechnet und ausgegeben. Es besteht die Möglichkeit, entweder das aus dem Hologramm rekonstruierte Intensitäts-, Amplituden- oder Phasenbild für die Verschiebungskorrektur zu benutzen. Zudem gibt es die Option, nur ausgewählte Bereiche der Bilder in die Bestimmung der Verschiebung einzubeziehen.
- **Tilt Series:** Zur Aufnahme der Kippserie. Dabei lassen sich jederzeit Schrittweite und Richtung der Kippserie über entsprechende Schaltflächen ändern. Außerdem befinden sich hier Bedienelemente, um Objekt- oder Leerhologramm in den bereits bestehenden Stapel nach Kippwinkeln geordnet einzusortieren.
- **Holography:** Zur Bestimmung der optimalen Position des Leerhologramms (Abschn. 5.2.4. Zudem kann hier festgelegt werden, ob für die Verschiebungskorrektur (s. Tracking) Zentralband, Amplitude oder Phase benutzt werden soll. Für die dafür notwendige holographische Rekonstruktion können Einstellungen wie Größe und Typ des Seitenbandfilters vorgenommen werden.

In THOMAS ist jeder Schritt, der keiner Kontrolle des Operators bedarf, für die Aufzeichnung der Kippserie automatisiert. Zum Beispiel wird nach Ausführung einer Kippung automatisch die Seite "Tracking" ausgewählt, da die Verschiebungskorrektur den darauffolgenden Schritt darstellt. Auf diese Weise wird versucht, den Aufwand weitestgehend zu minimieren, jedoch ohne Einschränkung in der Qualitätssicherung der aufgenommenen Daten.

### 5.2.7. Zusammenfassung

Die besonderen Ansprüche an die Aufzeichnung einer holographischen Kippserie in einem Philips CM200FEG\_ST/LL im Lorentz-Modus verlangen neue Ansätze zur erfolgreichen Realisierung der (teil-)automatisierten EHT. Die neu entwickelten Methoden zur Kalibrierung, zur Bestimmung des Euzentrischen Punktes, zur Ermittlung der optimalen Leerhologrammposition und zur automatischen Verschiebungskorrektur erweisen sich dabei als unverzichtbar. Die Aufnahme der holographischen Kippserien findet mit einer selbstentwickelten Tomographie-Software THOMAS statt, in welcher die obigen Methoden neben einer Reihe von weiteren Prozeduren über eine intuitiv zu bedienende Benutzeroberfläche dem Operator bereitgestellt werden. Aufgrund der objektorientierten Software-Struktur kann man mit THOMAS bereits vier verschiedene Elektronenmikroskoptypen steuern.

Im Vergleich zur rein manuellen Vorgehensweise verkürzt sich mit THOMAS die Dauer der Aufnahme einer holographischen Kippserie auf weniger als ein Drittel. Mittlerweile beträgt die Aufnahmezeit im Mittel etwa 3 Stunden. Dies führt zu weniger Strahlenschäden der Probe aufgrund geringerer Elektronen-Dosen (kürzere Bestrahlungszeit). Mithilfe von THOMAS wird praktisch nur mit der  $z$ -Steuerung des Goniometers auf das Objekt fokussiert ohne den Linsenstrom per Fokusknopf verändern zu müssen. Dadurch treten in einer Kippserie weder Vergrößerungsschwankungen noch Bilddrehung auf.

Dennoch ist die vollautomatisierte Aufnahme der Kippserie derzeit noch nicht sinnvoll: Aufgrund von Instabilitäten des Elektronenmikroskops (Drift des Elektronenstrahls, der Probenposition oder des Elektronenbiprismas) während der Aufnahme ist die Kontrolle durch den TEM-Benutzer weiterhin erforderlich, um u.a. Streifenkontrast und Probenposition in jedem einzelnen Hologramm zu überwachen und gegebenenfalls entsprechend zu reagieren.

## 5.3. Holographische Rekonstruktion

Die Rekonstruktion der komplexen Objektwelle aus einem Elektronenhologramm ist in Abschnitt 3.3 beschrieben. Aufbauend auf den dort eingeführten Prinzipien und Methoden werden in diesem Abschnitt einige neue Ansätze vorgestellt, um die Qualität der ungewrappten Phasenkippsreihe zu verbessern, die letztendlich für die tomographische Rekonstruktion des 3D-Potentials benutzt wird.

Zu diesem Zweck werden zunächst die beiden Kippserien von Objekt- und Leerhologrammen von Artefakten befreit (Abschnitt 5.3.1). Dazu gehören erstens die Beseitigung „falscher“ Pixelwerte, die entweder durch fehlerhafte Pixel der CCD-Kamera („Hot“ bzw. „Dead“ Pixel) oder durch Röntgeneinschläge in den Kamera-Szintillator verursacht werden, und zweitens, die Entfernung der Fresnel-Modulationen längs der Hologrammstreifen, welche infolge von Beugung am defokussierten Biprisma entstehen. Des Weiteren wird bei der holographischen Rekonstruktion für die Trennung von Seiten- und Zentralband statt eines

herkömmlichen Filters (z.B. Butterworth, Gl. 3.5), ein spezielles sinc-förmiges (Sinc=sinus cardinalis) Filter benutzt (Abschn. 5.3.2). Auf diese Weise werden artifizielle Abschneideeffekte („Überschwinger“) in der rekonstruierten Bildwelle eliminiert. Danach werden alle Phasenbilder der Kippserie durch Addition eines Offsets so bearbeitet, dass sie sich auf das Vakuum-Niveau  $\varphi_{vac} = 0$  beziehen (Abschn. 5.3.3). Auch für das Unwrapping der Phasen mussten neue Ansätze gefunden werden, da automatische Algorithmen (s. Abschn. 3.7) nicht immer korrekte Ergebnisse liefern. Zur Lösung dieses Problems wurde ein interaktiv zu benutzendes Software-Tool entwickelt (Abschn. 5.3.4).

Die Umsetzung der hier aufgeführten Prozeduren in DM-Skripten wurde so gestaltet, dass alle Prozeduren in einem Schritt auf die kompletten Serien von Hologrammen, Objektwellen, Amplituden- oder Phasenbilder angewendet werden können. Die dafür notwendigen Parameter werden ohne Aufwand über Benutzeroberflächen eingestellt. Einige der DM-Skripte sind so implementiert, dass sie die heutzutage standardmäßigen Multi-Kern-Prozessoren (durch *multi-threading*) besser ausnutzen können, und dadurch die Rechenzeit verkürzen.

#### 5.3.1. Beseitigung von Artefakten in Elektronenhologrammen

Wie bei jeder experimentellen Methode, gibt es in der Elektronenholographie sehr typische Artefakte, die es zu berücksichtigen gilt [Lichte et al. (1996)]. Die wichtigsten davon sind:

- Vignettierung durch das Biprisma,
- geometrische Verzeichnungen durch Biprisma, CCD-Camera und Projektivlinsen,
- Fresnelsäume durch Beugung am (defokussierten) Biprisma oder
- fehlerhafte Pixel in der CCD-Kamera.

Im Fall der hinreichenden guten Charakterisierung bzw. mathematischen Beschreibung der Artefakte besteht die Möglichkeit, diese entweder aus den Elektronenhologrammen oder den daraus rekonstruierten Amplituden und Phasen zu beseitigen.

Die Vignettierung ist nur relevant in der hochaufgelösten EH. Der Einfluss der Verzeichnungen in der rekonstruierten Phase, kann durch Zuhilfenahme eines Leerhologramms bei der holographischen Rekonstruktion teilweise korrigiert werden (Abschn. 3.3). Zur Korrektur des Einflusses der Fresnelsäume und der fehlerhaften Kamera-Pixel wurden zwei Prozeduren im Rahmen dieser Arbeit entwickelt, welche im folgenden beschrieben werden.

#### Beseitigung fehlerhafter Pixel

Zusätzlich zu den Problemen des Signaltransfers und des Rauschens in einer CCD-Kamera gibt es auch Probleme mit einzelnen fehlerhaften Pixeln. Darunter

## 5. Holographische Tomographie

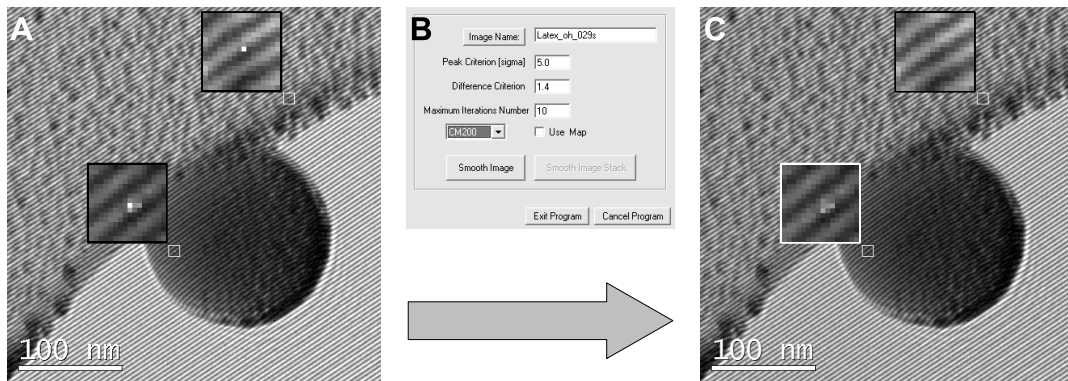


Abbildung 5.10.: Beseitigung fehlerhafter Pixel aus einem Objekthologramm einer mit Gold beschatteten Latexkugel.

**A:** Objekthologramm mit fehlerhaften Pixeln (s. vergrößerte Bereiche)

**B:** Benutzeroberfläche des DM-Skriptes zur Beseitigung der fehlerhaften Pixel

**C:** Objekthologramm ohne fehlerhafte Pixel (s. vergrößerte Bereiche)

zählen Pixel, die entweder überhaupt nicht mehr funktionieren oder ein stochastisches, nichtlineares Ansprechvermögen aufweisen. Zudem kann es während einer Aufnahme vorkommen, dass Atome in der Probe oder der Mikroskopsäule durch die hochenergetischen Elektronen angeregt werden, und danach sofort wieder relaxieren. Dabei emittieren diese Atome Röntgenquanten, welche (ungebremst durch den Szintillator) auf die CCD-Kamera einschlagen können.

Zur Identifizierung der fehlerhaften Pixel in der CCD-Abbildung werden ein Peak- und ein Differenzkriterium eingeführt. Dazu werden zunächst Mittelwert  $\bar{N}$  und Standardabweichung  $\sigma_N$  des gesamten Bildes berechnet. Das Peakkriterium legt fest, um das Wievielfache von  $\sigma_N$  ein Pixelwert  $N_{ij}$  von  $\bar{N}$  abweichen darf. Das Differenzkriterium definiert, um das Wievielfache von  $\sigma_N$  ein Pixelwert  $N_{ij}$  von einem seiner vier nächsten Nachbapixeln abweichen darf. Erfüllt ein Pixel eines der beiden Kriterien nicht, wird es auf den gewichteten Mittelwert seiner acht Nachbapixel gesetzt. Die Gewichtung wird realisiert, indem die vier diagonal liegenden Pixel nur mit dem  $1/\sqrt{2}$ -fachen der anderen vier seitlich liegenden Pixel berücksichtigt werden.

Dieser Algorithmus bildet den Kern des DM-Skriptes: *“Remove Hot Dead Pixels”*, bei dem über die in Abb. 5.10 (B) gezeigte Benutzeroberfläche die Kriterien bequem eingestellt und deren Einfluss auf das Ergebnis getestet werden kann.

Die Abbildung 5.10 zeigt am Beispiel einer mit Gold beschatteten Latexkugel, wie auf diese Weise aus einem Objekthologramm (A) die fehlerhaften Pixel beseitigt wurden (C).



### Modellierung der Fresnelschen Beugungssäume

Da in der off-axis EH das Biprisma oberhalb der Bildebene positioniert ist, um Referenz- und Bildwelle in der Bildebene zur Überlagerung zu bringen, wird das Biprisma selbst defokussiert abgebildet. Dies führt im Elektronenhologramm zu zusätzlichen Amplituden- ( $A_{fres,li}$ ,  $A_{fres,re}$ ) und Phasenmodulationen ( $\Phi_{fres,li}$ ,  $\Phi_{fres,re}$ ), die in Fresnelnäherung die Beugung von Objekt- und Referenzwelle an rechter und linker Kante des Biprismas beschreiben. Der Einfluss der Fresnelmodulationen lässt sich im Leerhologramm näherungsweise<sup>11</sup> durch

$$I_{hol}(\mathbf{r}) = A_{fres,li}^2(\mathbf{r}) + A_{fres,re}^2(\mathbf{r}) + 2\mu A_{fres,li} A_{fres,re} \cos(2\pi \mathbf{g}_c \mathbf{r} + \Phi_{fres,li}(\mathbf{r}) - \Phi_{fres,re}(\mathbf{r})) \quad (5.7)$$

beschreiben [Lehmann (1997)].

Die Profile in Abbildung 5.11 (A) zeigen den Verlauf der Fresnelschen Amplituden- und Phasenmodulationen in Abhängigkeit des Abstandes zum äußeren Rand des geometrischen Biprisma-Schattens in der Bildebene. Dabei wurde die Kalibrierung in den Profilen an das experimentelle, im Lorentz-Modus aufgezeichnete Hologramm aus Abb. 5.11 (B) angepasst. Je nach angelegter Fadenspannung am Biprisma überlagern sich im Hologramm unterschiedlich weit vom Rand des geometrischen Biprisma-Schattens entfernte Bereiche der Fresnelschen Modulationen. Im experimentellen Hologramm in Abb. 5.11 (B) sind diese Bereiche ca. 500 nm vom Rand des geometrischen Biprisma-Schattens entfernt. Dies lässt sich durch Simulation entsprechend der obigen Gleichung (5.7) verifizieren. Dabei werden für  $\mu$  und  $\mathbf{g}_c$  die experimentellen Werte, und für  $A_{fres,li}$ ,  $A_{fres,re}$ ,  $\Phi_{fres,li}$ ,  $\Phi_{fres,re}$  die in Abb. 5.11 (A) schwarz markierten Bereiche eingesetzt. Das so simulierte Hologramm (Abb. 5.11 (C)) besitzt gute Übereinstimmung mit dem experimentellen Hologramm. Die Fresnel-Modulationen lassen sich im Fourierraum als zusätzliches Frequenzband zwischen Zentral- und Seitenband, sowohl im Experiment (Abb. 5.11 D) als auch in der Simulation (Abb. 5.11 E) identifizieren.

### Beseitigung der Fresnelschen Beugungssäume

Das Hologramm wird vor der Fouriertransformation mit einem zweidimensionalen Hanning-Window [Lehmann (1992); Wolf (2004)] multipliziert. Dadurch wird im Hologrammspektrum jedes Pixel mit der Fouriertransformierten des Hanning-Windows gefaltet. Diese hat, verglichen mit der sinc-Funktion (FT des Rechteck-Fensters), zwar doppelt so breite Maxima, dafür besitzen deren Nebenmaxima nur ein Zehntel der Höhe. Infolgedessen werden die sogenannten *streaks* (Nebenmaxima des sinc) reduziert, und das Fresnelspektrum lässt sich besser im Hologrammspektrum identifizieren.

<sup>11</sup>Eine genaue Beschreibung findet sich bei Lubk (2010).

## 5. Holographische Tomographie

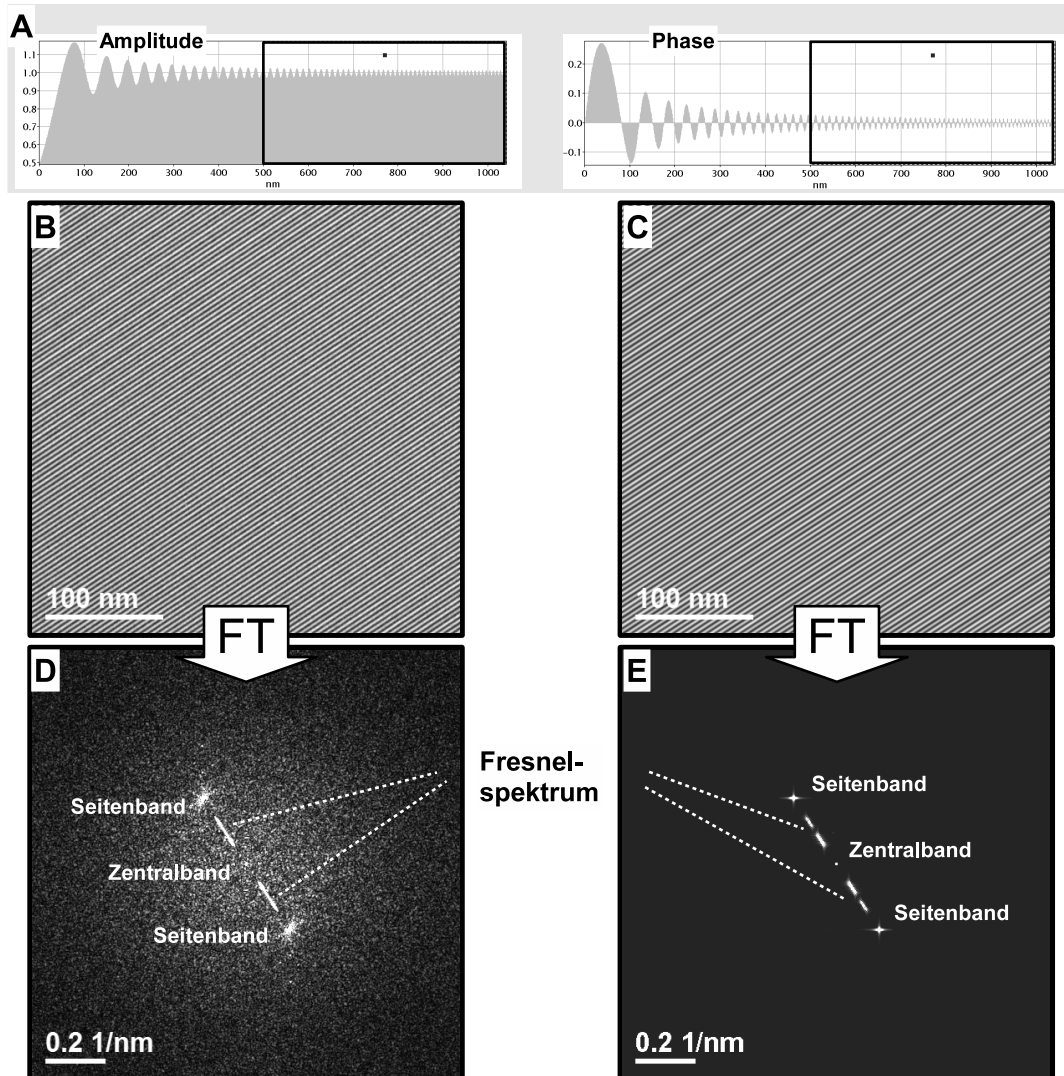


Abbildung 5.11.: Fresnelsche Beugungssäume im Elektronenhologramm.

**A:** Durch Beugung am Biprisma verursachte zusätzliche Amplituden- und Phasenmodulation in Fresnelscher Näherung. Die Abszisse entspricht dem Abstand zum äußeren Rand des geometrischen Biprisma-Schattens in der Bildebene.

**B:** Experimentelles Hologramm, aufgezeichnet im Lorentz-Modus.

**C:** Simuliertes Hologramm nach Gleichung (5.7) und bei Benutzung der in (A) schwarz markierten Bereiche.

**D,E:** Fouriertransformierte von (B,C).

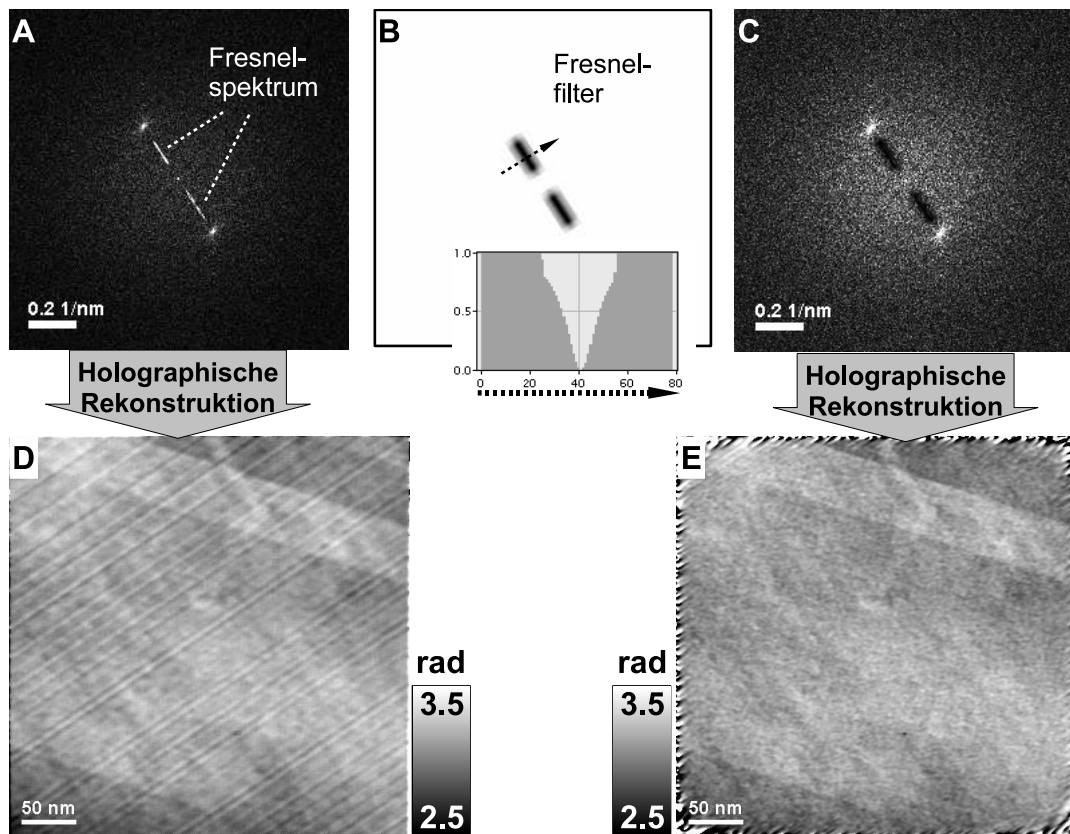


Abbildung 5.12.: Beseitigung der Fresnelstreifen. Durch Multiplikation der Fouriertransformierten des Hologramms (A) mit einem geeigneten Filter (B) können die zu den Fresnelsäumen gehörenden Raumfrequenzen entfernt werden (C). Dadurch werden auch die Fresnelschen Phasenmodulationen, welche ohne Filterung in der rekonstruierten Phase (D) vorhanden sind, in der Phase (E) eliminiert.

Um die störenden Fresnelschen Modulationen in der rekonstruierten Objektwelle zu entfernen, wird das Fresnelspektrum durch eine geeignete numerische Maske herausgefiltert. Dabei sollte das Filter im Fourierraum einerseits möglichst nur den Bereich des Fresnelspektrums dämpfen, aber andererseits nicht zu scharfkantig sein, um die unvermeidbaren Artefakte des Filters („Überschwinger“) im Ortsraum gering zu halten.

Abbildung 5.12 zeigt die Anwendung (Multiplikation) eines derartigen Filters zur Beseitigung der Fresnelstreifen in einem Leerhologramm und der daraus rekonstruierten Phase.

Die hier vorgestellte Methode hat jedoch Grenzen, wenn sich Fresnelspektrum und Objektinformation im FR überlagern oder die Fresnelstreifen durch die Verteilung des Objektes im OR zu stark moduliert werden.

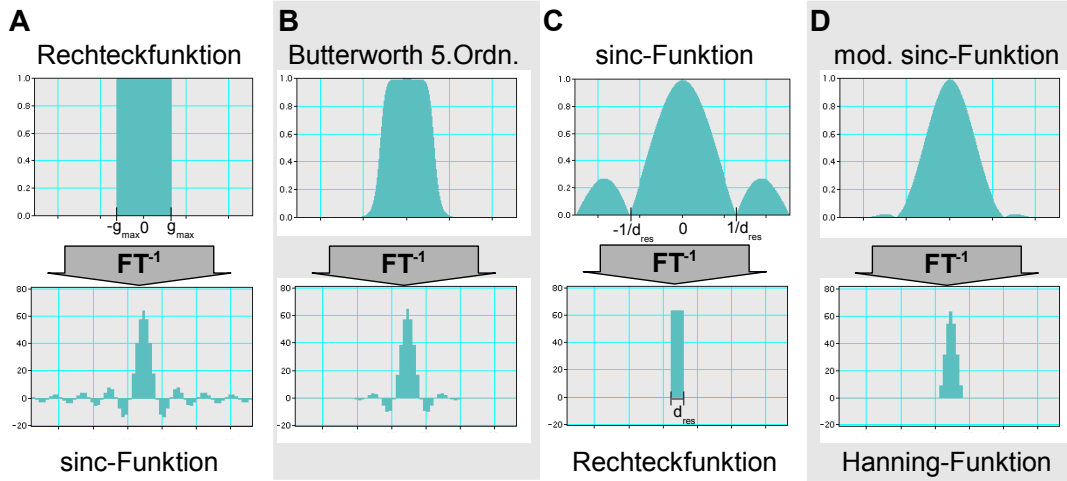


Abbildung 5.13.: Numerische Masken zur Filterung des Seitenbandes (oben) und zugehörige Faltungskerne (PSF) in der rekonstruierten Bildwelle (unten).

### 5.3.2. Rekonstruktion mit Sinc-Filter

Die begrenzte Auflösung der rekonstruierten Bildwelle wird durch eine Faltung der Objektwelle mit einer Point-Spread-Funktion (PSF) beschrieben. Die PSF ist in mittlerer Auflösung hauptsächlich durch die invers Fouriertransformierte der numerischen Maske zur Filterung des Seitenbandes gegeben (Abschn. 3.4). Standardmäßig werden dabei entweder eine harte Blende, d.h. ein bis zu einer Maximalfrequenz  $g_{max}$  konstantes Filter, oder ein Butterworth-Filter verwendet (Abschn. 3.3). Die beiden Filter und deren entsprechende Faltungskerne sind für den eindimensionalen Fall in Abbildung 5.13 (A) und (B) dargestellt. Die darin zu erkennenden Nebenmaxima (Überschwinger) führen jedoch zu einer starken Delokalisierung, die eine Korrelation von selbst weiter voneinander entfernten Punkten der Objektwelle bewirkt.

Um diese Probleme zu vermeiden, kann man zur Filterung des Seitenbandes eine sinc-Funktion (Sinus cardinalis)

$$W_{sinc}(g) = \text{sinc}(\pi d_{res}g) := \frac{\sin(\pi d_{res}g)}{\pi d_{res}g} \quad (5.8)$$

verwenden. Dadurch ist jedes Pixel der rekonstruierten Objektwelle mit einer Rechteckfunktion

$$\text{rect}(x) = \Pi(x) = \begin{cases} 1 & \text{falls } |x| \leq d_{res}/2 \\ 0 & \text{falls } |x| > d_{res}/2 \end{cases} \quad (5.9)$$

gefaltet (Abb. 5.13 C), und das Problem der Delokalisierung ist lediglich auf den Bereich  $\Delta x \leq d_{res}$  beschränkt.

Bei der praktischen Umsetzung wird statt der Sinc-Funktion (Gl. 5.8) die

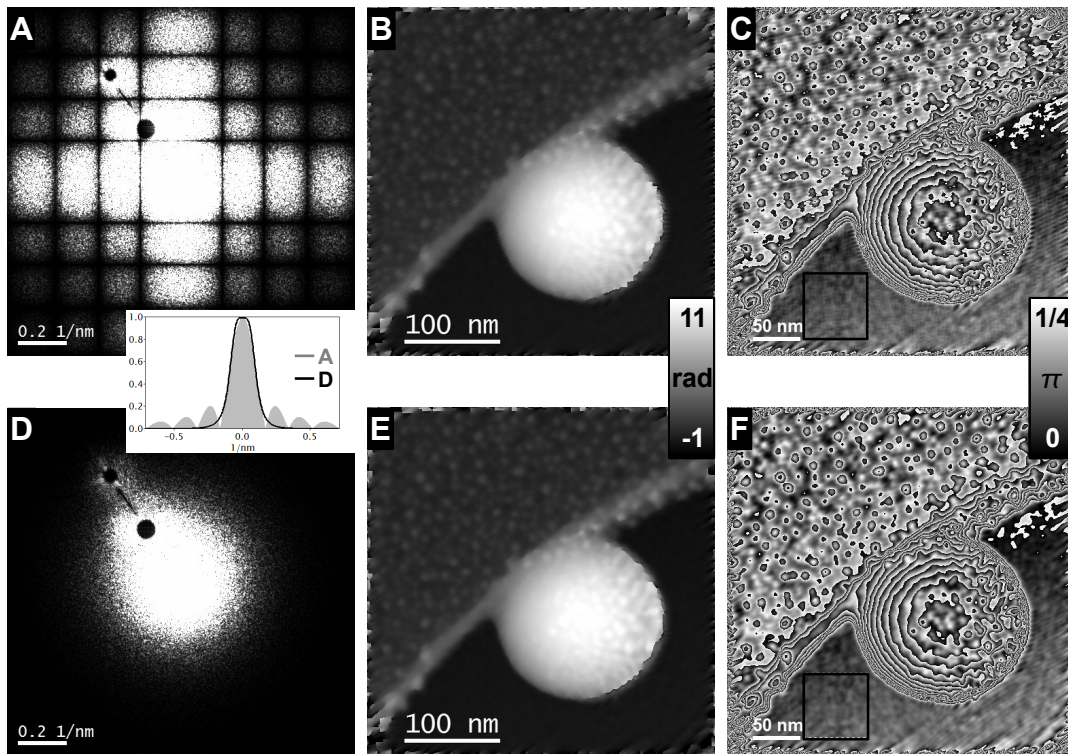


Abbildung 5.14.: Vergleich der holographisch rekonstruierten Phasenbilder bei Benutzung einer Sinc-Funktion (oben) und eines Butterworth-Filters (unten).

A, D: Gefiltertes Seitenband (Darstellung der Amplitude, Kontrast stark aufgezo- gen). Der 1D-Plot dazwischen stellt das radiale Profil der Filter dar.

B, E: Phasenbilder nach dem Unwrapping.

C, F: Achtfach verstärkte Phasenbilder (Phase modulo  $\pi/4$ ). Bei der mit sinc-Filter rekonstruierten Phase (F) werden aufgrund der schwächer korrelierten Pixel feinere (“individuellere”) Details sichtbar.

## 5. Holographische Tomographie

Diskrete FT (DFT) der Rechteckfunktion (Gl. 5.9) zur Filterung des Seitenbandes benutzt. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass bei darauffolgender inverser DFT die rekonstruierte Bildwelle tatsächlich mit einer Rechteckfunktion gefaltet ist. Dagegen würde die Benutzung einer auf die Bildgröße begrenzten (und damit inkommensurable) Sinc-Funktion zu neuen Artefakten (Überschwingern) führen. Des Weiteren bietet es sich an, das Zentralband separat durch einen geeigneten Filter zu dämpfen, da die Dämpfung durch die Sinc-Funktion mitunter nicht ausreicht<sup>12</sup>. Zu diesem Zweck hat sich die Multiplikation mit einem Butterworth-Filter bewährt.

Die Benutzung eines sinc-Filters ist analytisch äquivalent zur holographischen Ortsraumrekonstruktion nach Lehmann (1992) und Meyer (1996), bei der die Amplitude aus dem mittleren Kontrast und die Phase aus der mittleren Verbiegung der Hologrammstreifen innerhalb eines Superpixels bestimmt wird. Dieses Superpixel entspricht gerade der invers Fouriertransformierten einer sinc-Funktion. Die Mittelung innerhalb eines Superpixels kann jedoch in der Ortsraum-Methode auch verschieden gewichtet, z.B. gemäß einer Hanning-Funktion

$$w_H(x) = \left(1 - \cos\left(2\pi \frac{x}{d_{res}}\right)\right) \quad (5.10)$$

mit  $d_{res}$  der Größe des Superpixels, ausgeführt werden. Dies entspricht wiederum in der Fouriermethode der Benutzung der FT des Hanning-Windows, einer Art modifizierter Sinc-Funktion (Abb. 5.13 D)

$$W_H(q) = \frac{\sin(\pi x_{res} q)}{\pi x_{res} q} \frac{1}{1 - x_{res}^2 q^2} = \text{sinc}(\pi x_{res} q) \frac{1}{1 - x_{res}^2 q^2}. \quad (5.11)$$

Die modifizierte Sinc-Funktion hat den Vorteil, dass ihre Nebenmaxima 10% niedriger sind als die der normalen sinc-Funktion, was eine bessere Dämpfung des Zentralbandes zur Folge hat.

Anhand des schon mehrmals benutzten Beispiels der Latexkugel auf Kohlefolie sollen die holographisch rekonstruierten Phasen bei Benutzung von sinc-Funktion und Butterworth-Filter miteinander verglichen werden. Dazu wurde ein Butterworth-Filter zweiter Ordnung gewählt, dessen Radius genauso groß ist wie der der sinc-Funktion (vgl. Profil in Abb. 5.14 zwischen A und D). Zum Vergleich wurden die beiden rekonstruierten Phasenbilder zum einen einer Phase-Unwrapping Prozedur unterzogen (Abb. 5.14 B, E), und zum anderen achtfach verstärkt (5.14 C, F). Die Abschätzung des Rauschens in beiden Phasenverteilungen über die Standardabweichung  $\sigma_\varphi$  innerhalb eines konstanten Bereiches im Vakuum (s. schwarzes Rechteck in Abb. 5.14 C, F) liefert praktisch identische Ergebnisse: Für den sinc-Filter ist  $\sigma_\varphi = 0.058$ , für den Butterworth-Filter ist  $\sigma_\varphi = 0.057$ . Somit liefert der Sinc-Filter bzgl. des Rauschverhaltens zunächst keine Verbesserung im Vergleich zu ähnlich geformten Butterworth-Filtern. Jedoch offenbart die genauere Betrachtung der Phasensprünge (Äquiphasenlinien) in den Abbildungen (C) und (F), dass bei der mit sinc-Filter rekonstruierten Phase aufgrund der schwächer

<sup>12</sup>Das erste Nebenmaximum des sinc erreicht noch 20% des Hauptmaximums.

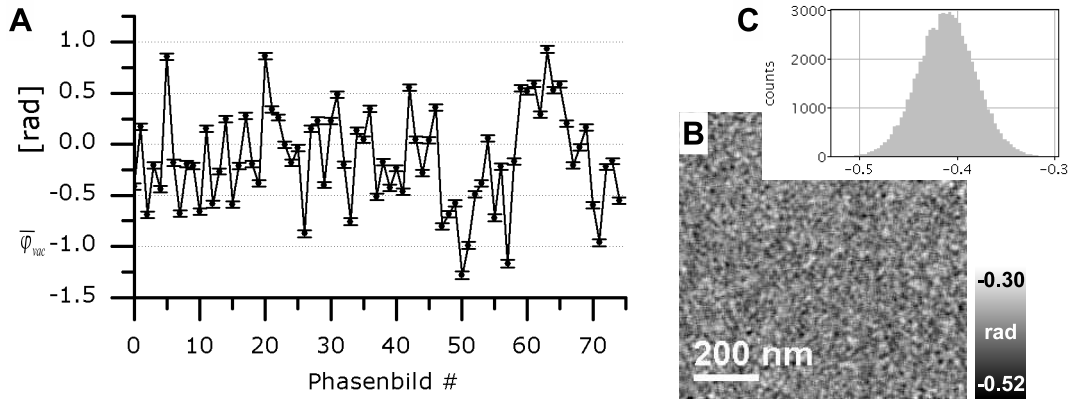


Abbildung 5.15.: Stochastische Schwankungen des Phasenoffsets innerhalb einer Serie von Leerhologrammen.

**A:** Mittelwerte  $\bar{\varphi}_{vac}$  von 75 Phasenbildern, welche aus einer Serie von 150 nacheinander aufgezeichneten Leerhologrammen rekonstruiert wurden. Die Fehlerbalken entsprechen der Standardabweichung des jeweiligen Phasenbildes.

**B:** ein Phasenbild der Serie mit zugehörigen Histogramm (C).

korrelierten Pixel feinere (“individuellere”) Details sichtbar werden.

### 5.3.3. Stabilität des Phasen-Offsets

Für die genaue Bestimmung des projizierten Objektpotentials aus der Phase ist es erforderlich, dass sich die Phasenverteilung auf das Vakuum-Niveau  $\varphi_{vac} = 0$  bezieht. Im Idealfall würde dies wegen der Subtraktion der aus dem Leerhologramm rekonstruierten Phase (Leerphase) automatisch gelten. Jedoch sorgen Instabilitäten des TEM, Aufladungen des Biprismas oder mitunter auch Streufelder der Probe zu zeitlichen, stochastischen Schwankungen der Phase.

Zu deren Messung wurden 75 Phasenbilder aus einer Serie von 150 nacheinander aufgenommen Leerhologrammen rekonstruiert. Jedes zweite Phasenbild wurde dabei als Leerphase zur Korrektur der Verzeichnungen in dem ersten benutzt. Im Idealfall sollte für den Mittelwert jedes Phasenbildes  $\bar{\varphi}_{vac} = 0$  gelten. Jedoch weichen einige Werte bis zu  $\pm 1 \text{ rad}$  von Null ab, wie das Diagramm in Abb. 5.15 zeigt. Damit dennoch sichergestellt werden kann, dass  $\varphi_{vac} = 0$  gilt, sollte in jedem Objektphasenbild ein Vakuumbereich vorhanden sein, um hier den Phasenoffset zu  $\varphi_{vac} = 0$  zu setzen.

Die auf diese Weise erreichte Korrektur des Phasen-Offsets, kann für alle Phasenbilder einer Kippserie mithilfe eines selbstentwickelten Software-Tools automatisch durchgeführt werden.

### 5.3.4. Interaktives Unwrapping einer Phasenkippsreihe

In Abschnitt 3.7 wurde das Prinzip des ein- und zweidimensionalen Phase-Unwrapping bereits eingeführt, bekannte Algorithmen dafür, wie Goldsteins “Branch-Cut-Algorithmus” oder Flynns “Minimum Discontinuity Approach” vorgestellt, aber auch die dabei auftretenden Probleme bei Unterabtastung und Rauschen in der Phase diskutiert. Insbesondere bei den in dieser Arbeit untersuchten nadelförmigen Proben liefern die automatischen Routinen infolge der, gemessen an der Auflösung, extrem hohen Gradienten an den Objektkanten falsche Resultate. Dies lässt sich schon daran erkennen, dass Vakuumbereiche links und rechts der Probe, oder identische Probenstellen in zwei benachbarten Kippungen um mehrere Vielfache von  $2\pi$  voneinander abweichen. Wegen dieser Probleme bedarf es zusätzlicher Information über das in der Phase abgebildete Objekt. Zum Beispiel kann mittels der Dicke, des MIP und Gl. (2.6) die resultierende Phasenschiebung, zumindest auf das Vielfache von  $2\pi$  genau, abgeschätzt werden.

Zur Lösung dieser Probleme wurde ein interaktiv zu bedienendes Software-Tool (Benutzeroberfläche s. Abb. 5.16) entwickelt, das durch gezielte Vorgaben (Randbedingungen) den Phase-Unwrapping Prozess in die gewünschte Richtung steuern kann. Die wichtigsten Kernpunkte sollen im folgenden kurz vorgestellt werden:

- a) 1D-Phase-Unwrapping entlang beliebiger senkrechter oder waagerechter Pfade. Das eindimensionale Unwrapping der gewrappten Phase  $\varphi_w(m)$  mit  $m = 1, \dots, M$  wird wie in Abschnitt 3.7.1 beschrieben durchgeführt. Auf diese Weise wird ein ganzzahliger Phasenunterschied

$$j = \text{Int} \left( \frac{\varphi_u(M) - \varphi_u(1)}{2\pi} \right) \quad (5.12)$$

in Einheiten von  $2\pi$  zwischen letztem und erstem Pixel korrigiert. Die Funktion  $\text{Int}()$  rundet dabei den Ausdruck in der Klammer auf ganzzahlige Werte<sup>13</sup>.

- b) Vorgabe der zusätzlichen Bedingung, dass (bspw. aufgrund der ungefähren Kenntnis der Objektdicke) ein Phasenunterschied von  $2\pi \cdot j_{\max}$  zwischen  $\varphi_u(M)$  und  $\varphi_u(1)$  in der ungewrappten Phase auftreten muss. Falls diese Bedingung (z.B. durch Unterabtastung der gewrappten Phase) in dem nach Schritt a) erhaltenen Ergebnis nicht erfüllt ist, d.h. falls  $j \neq j_{\max}$  ist, dann wird in der Ableitung  $\varphi'_u$  bei  $j < j_{\max}$  nach Minima, bzw. bei  $j > j_{\max}$  nach Maxima gesucht. Dahinter steckt die Annahme, dass bei einem Extremum ein Phasensprung tatsächlich vorhanden ist, aber in der gewrappten Phase nicht abgetastet wird. Die an diesen Stellen vermuteten zusätzlichen Phasensprünge werden beim erneuten Unwrapping berücksichtigt, sodass (ggf. auch erst nach mehreren Iterationen) für die Phase  $\varphi_u(m)$  schließlich  $j_{\max} = j$  gilt. Die auf diese Weise mehr oder weniger intuitiv gefundenen zusätzlichen Phasensprünge sind leider nicht immer korrekt. Somit hängt das Ergebnis

---

<sup>13</sup>Wenn Nachkommastelle  $< 0.5$ , dann abrunden, sonst aufrunden.



mitunter davon ab, ob die Ausführung der Prozedur von links nach rechts, von oben nach unten oder in die jeweils entgegengesetzten Richtungen geschieht. Folglich obliegt es bis zu einem gewissen Grad der Fertigkeit des Benutzers, das Phase-Unwrapping so zu gestalten, dass die Gesamtphasenschiebungen sowohl innerhalb eines Phasenbildes als auch innerhalb der gesamten Kippserie konsistent sind.

- c) Vorgabe der Richtung des Pfades durch Drehung der Phasenbilder. Um das eindimensionale Phase-Unwrapping nicht nur waagrecht und senkrecht, sondern in jede beliebige Richtung durchzuführen, wird das Phasenbild rotiert, das in b) beschriebene Unwrapping durchgeführt, und das Phasenbild wieder zurück rotiert. Bei der Drehung eines Phasenbildes ist zu beachten, dass darin enthaltene  $2\pi$ -Phasensprünge durch Interpolation verschmieren. Dies ist aber problematisch für das Phase-Unwrapping. Um diesem Problem zu entgegen, wird zunächst aus der Phasenverteilung  $\varphi(x, y)$  die Welle  $\exp(i\varphi(x, y))$  berechnet. Danach wird statt der Phase die Welle rotiert, und schließlich aus der rotierten Welle wieder die Phase  $\varphi'(x, y)$  ermittelt. Diese drei Operationen können in dem ersten Term des Ausdrucks

$$\varphi'(x, y) = \arg \{ \mathbf{D} \exp [i\varphi(x, y)] \} + 2\pi \text{Int} \left\{ \frac{\mathbf{D}\varphi(x, y) - \arg(\mathbf{D} \exp [i\varphi(x, y)])}{2\pi} \right\} \quad (5.13)$$

mit der Drehmatrix  $\mathbf{D}$  zusammengefasst werden. Der zweite Term stellt schon bereits bestimmte Phasenschiebungen größer  $2\pi$  wieder her.

- d) Anwendung von Goldsteins Unwrapping Algorithmus auf Teilbereiche des Phasenbildes.
- e) Addition und Subtraktion eines  $2\pi$  Phasen-Offsets auf ein Teil- oder das Gesamtbild.
- f) Erleichterte Bedienung für das Unwrapping einer gesamten Phasenkippsreihe.

Abbildung 5.17 demonstriert am Beispiel einer nadelförmigen Germanium Probe, wie das Phase-Unwrapping mit der hier beschriebenen interaktiven Methode verbessert wird.

Mit Flynns Algorithmus (Abschn. 3.7.3) wird weder die gesamte Phasenschiebung der Probe (um  $2\pi$  zu klein) noch die Silizium-Germanium Grenzschicht korrekt wiederhergestellt (s. Abb. 5.17 B). Dagegen gelingt dies mithilfe des interaktiven Ansatzes (Abb. 5.17 C): Für das korrekte Unwrapping der gesamten Phasenschiebung wurde wie in Punkt b) vorgegangen, und der entsprechende Wert für  $j_{max}$  vorgegeben. Um die Silizium-Germanium Grenzschicht sauber zu unwrappen, wurde das Phasenbild wie in Punkt c) beschrieben rotiert, so dass die Grenzschicht beim Unwrapping vertikal lag.

## 5. Holographische Tomographie

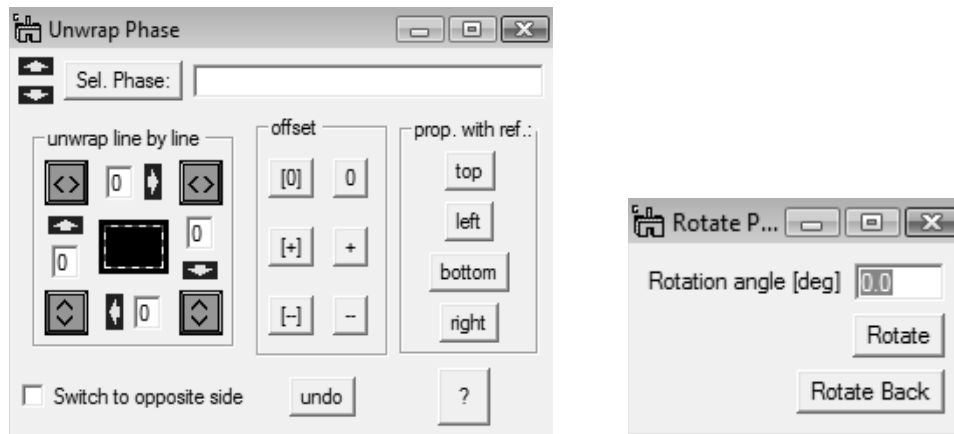


Abbildung 5.16.: Benutzeroberfläche des selbstentwickelten interaktiven Software-Tools zum Phase-Unwrapping. Die Kernpunkte dieses Programms sind unter den Punkten a) - f) erklärt.

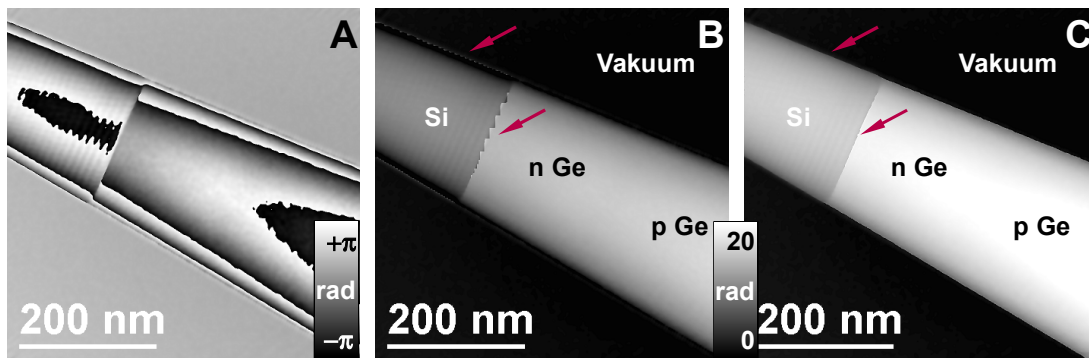


Abbildung 5.17.: Verbessertes Phase Unwrapping.

- A:** Gewrappte Phase (A) einer nadelförmigen Germanium-Probe.
- B:** Phase nach Unwrapping mit Flynn's Algorithmus. Damit gelingt es weder die Silizium-Germanium Grenzschicht noch die gesamte Phasenschiebung der Probe (um  $2\pi$  zu klein) korrekt wiederherzustellen.
- C:** Phase nach interaktiven Unwrapping mit selbst-entwickelten Software-Tool. Darin sind die in (B) auftretenden Probleme korrigiert.

## 5.4. Ausrichtung der Phasen-Kippserie

Eine genaue Ausrichtung der Phasen-Kippserie ist von hoher Bedeutung für die Lateral- und Signalauflösung im später rekonstruierten 3D-Potential. Deshalb wurde je nach Geometrie und Beschaffenheit des Objektes mithilfe verschiedener Ansätze versucht, eine (sub)-pixelgenaue Ausrichtung zu erreichen. Aufgrund der in Abschnitt 4.5.1 erwähnten Probleme, kann die Kreuz-Korrelation nur für eine erste grobe Ausrichtung der Kippserie angewandt werden. Eine sehr genaue Ausrichtungsmethode ist die anhand von Bezugspunkten (Abschn. 4.5.2). Jedoch benötigt diese Methode Gold-Partikel oder ähnliche punktförmige Teilchen als Marker in der Nähe des Objektes. Von den später in Kapitel 6 präsentierten 3D-Rekonstruktionen war dies nur bei der Latexkugel (Abschn. 6.2) der Fall. Dabei wurde auf die Routinen aus bereits existierenden, frei zugänglichen Softwarepaketen wie IMOD<sup>14</sup> oder TOM-Toolbox<sup>15</sup> zurückgegriffen. Für deren Benutzung wurden in DM entsprechende Export/Import-Routinen zur Konvertierung vom Gatan-Dateiformat (*dm3*) in das jeweilige Dateiformat (*mrc*, *em*) implementiert.

Generell wurden die beiden Alignierungsschritte zur Bestimmung und Korrektur der Verschiebungen der Kippserie getrennt vorgenommen. Im ersten Schritt werden die Verschiebungen ermittelt und in sogenannten *image tags* der Kippserie gespeichert. Im zweiten Schritt werden die Werte aus den *image tags* wieder ausgelesen, und zur Korrektur verwendet. Diese Trennung der beiden Schritte erlaubt es, zunächst die Verschiebungen bspw. in der Kippserie der Amplituden oder Intensitäten zu ermitteln, und später für die Korrektur der Kippserie der zugehörigen Phasen zu benutzen.

### 5.4.1. Manuelle Ausrichtung mithilfe von Bezugslinien

Da mithilfe der Kreuzkorrelation wegen der in Abschnitt 4.5.1 erwähnten Probleme, insbesondere bei den in dieser Arbeit häufig untersuchten nadel- oder stabförmigen Objekten, keine zufriedenstellende Ausrichtung gelang, mussten die Kippserien manuell ausgerichtet werden. Dazu wurden signifikante, bei jeder Kippung gut sichtbare Objektstrukturen (z.B. Kanten, Grenzflächen) verfolgt, durch Bezugslinien markiert, und deren Positionen zur Verschiebungskorrektur verwendet.

Dieses Prinzip der manuellen Ausrichtung ist in Abbildung 5.18 am Beispiel der Amplitudenkippserie einer nadelförmigen Germanium-Probe gezeigt.

Da die auf diese Weise bestimmten Verschiebungen in den *image tags* der Amplitudenkippserie gespeichert sind, können diese später auch zur Ausrichtung der Phasenkippserie benutzt werden.

<sup>14</sup><http://bio3d.colorado.edu/imod/>, "The IMOD Home Page" (Boulder Laboratory for 3-D Electron Microscopy of Cells, Colorado, USA)

<sup>15</sup>[http://www.biochem.mpg.de/baumeister/tom\\_e/index.html/](http://www.biochem.mpg.de/baumeister/tom_e/index.html/) (MPI für Biochemie, Martinsried, Deutschland)

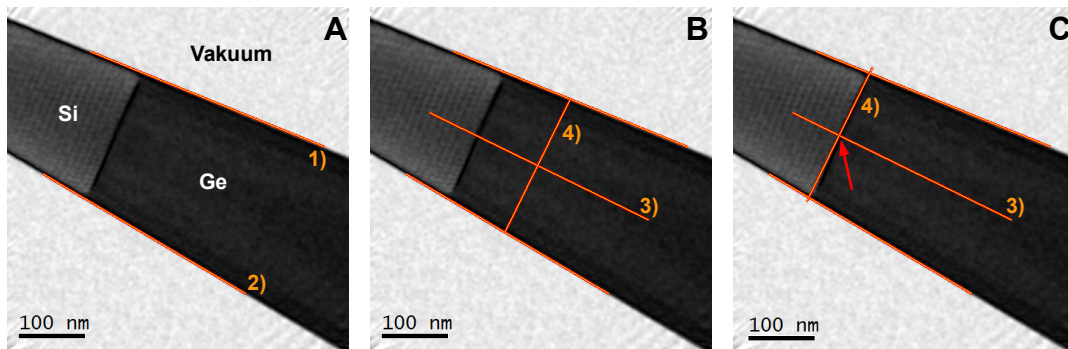


Abbildung 5.18.: Manuelle Ausrichtung mithilfe von Bezugslinien am Beispiel der Amplitudenkippserie einer nadelförmigen Silizium-Germanium-Probe.

**A:** Die Objektkanten werden durch die Linien 1) und 2) markiert.

**B:** Aus den beiden Linien wird die Mittellinie 3) und die dazu senkrecht stehende Linie 4) berechnet.

**C:** Die Linie 4) wird parallel bis zur Grenzschicht zwischen Silizium und Germanium verschoben. Der Schnittpunkt von Linie 3) und 4) (markiert durch den roten Pfeil) wird als Referenzpunkt für diese Projektion gespeichert. Bei der Ausrichtung werden die Projektionen so verschoben, dass ihre Referenzpunkte übereinander liegen.

#### 5.4.2. Manuelle Ausrichtung mithilfe der Schnittebenen

Betrachtet man statt der Projektionen, welche nach der Definition in Abschnitt 4.1 den  $\hat{x}, y$ -Ebenen entsprechen, die  $\hat{x}, \alpha$ - bzw.  $y, \alpha$ -Ebenen einer Kippserie, so lassen sich Verschiebungen zwischen einzelnen Projektionen als zueinander verschobene 1D-Schnittlinien identifizieren. Die dadurch gewonnene Information kann für die Ausrichtung der Kippserie verwendet werden.

Basierend auf dieser Idee wurde eine Verschiebungskorrektur entwickelt, deren Prinzip im folgenden anhand von Abbildung 5.19 am Beispiel der Phasenkippsreihe einer nadelförmigen Silizium-Germanium-Probe erläutert wird. In den  $\hat{x}, \alpha$ - und  $y, \alpha$ -Ebenen (Abb. 5.19 B und D) kann mithilfe eines sogenannten ROI-Tools<sup>16</sup> (rotes Kreuz) entlang der  $\alpha$ -Linien so verschoben werden, dass Versätze zu benachbarten Linien verschwinden. Die auf diese Weise ausgerichteten  $\hat{x}, \alpha$ - und  $y, \alpha$ -Ebenen sind in Abb. 5.19 C und E dargestellt. Die dazu gehörenden Verschiebungswerte werden in einem Datenfeld (Abb. 5.19 F) gespeichert, um später mit dessen Hilfe die gesamte Kippserie auszurichten.

Bei dieser Form der Korrektur ist es ratsam zu prüfen, ob die gefundenen Verschiebungen nicht nur für eine einzelne, sondern auch für alle anderen  $\hat{x}, \alpha$ - bzw.  $y, \alpha$ -Schnittebenen gelten. Zudem haben Verschiebungskorrekturen in der einen auch Auswirkungen auf die dazu senkrechte Schnittebene. Aus diesem Grunde erfordert

<sup>16</sup>ROI steht für *Region-Of-Interest*.

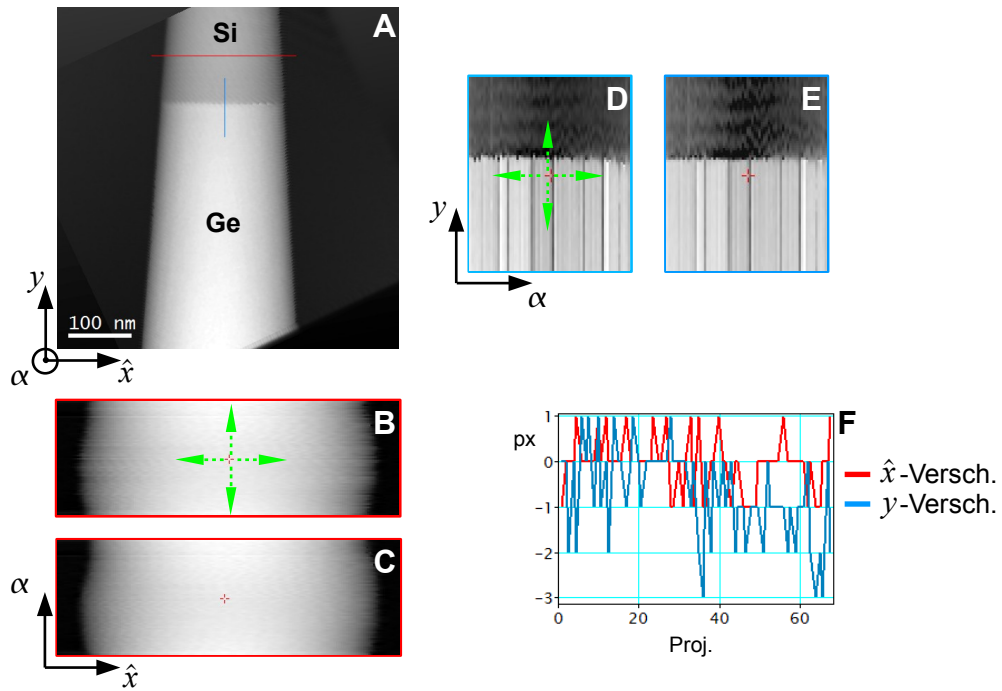


Abbildung 5.19.: Manuelle Ausrichtung anhand von  $\hat{x}, \alpha$ - und  $y, \alpha$ -Ebenen der Kippserie am Beispiel einer nadelförmigen Germanium-Probe.

**A** Phasenbild aus einer Kippserie.

**B/D**:  $\hat{x}, \alpha$ -/ $y, \alpha$ -Ebene mit Verschiebungen. Mit dem ROI-Tool (rotes Kreuz) können Verschiebungen zwischen den  $\alpha$ -Linien korrigiert werden.

**C/E**:  $\hat{x}, \alpha$ -/ $y, \alpha$ -Ebene nach Verschiebungskorrektur.

**F**: Korrekturwerte der Verschiebungen in  $\hat{x}$ - und  $y$ -Richtung.

es meist mehrere iterative Schritte, bis eine genaue Ausrichtung erzielt wird.

### 5.4.3. Bestimmung der Kippachse

Nach Ausrichtung der Kippserie mithilfe der oben beschriebenen Methoden fehlt, im Unterschied zur Ausrichtung mit Markern (Abschn. 4.5.2), die Information über die Position  $\hat{x}_0$  und die Orientierung  $\phi_0$  der (projizierten) Kippachse in der Kippserie. Das liegt daran, dass in obigen Methoden Verschiebungskorrekturen eher lokal, zwischen benachbarten Projektionen stattfinden, während die Ausrichtung mit Markern eine globale Lösung des Problems liefert. Aus diesem Grund muss in einem Extraschritt diese Information gewonnen werden. Dabei wird ähnlich wie bei Midgley und Weyland (2003) vorgegangen<sup>17</sup>:

Jedes Sinogramm  $i$  der Kippserie bezieht sich auf einen bestimmten Punkt auf der Kippachse  $(x_i, y_i, z_i)$  im 3D-Raum. Die Projektion dieses Punktes entspricht

<sup>17</sup>Diese Methode ist auch in der Inspect3D-Software der Firma FEI (Eindhoven, The Netherlands) implementiert.

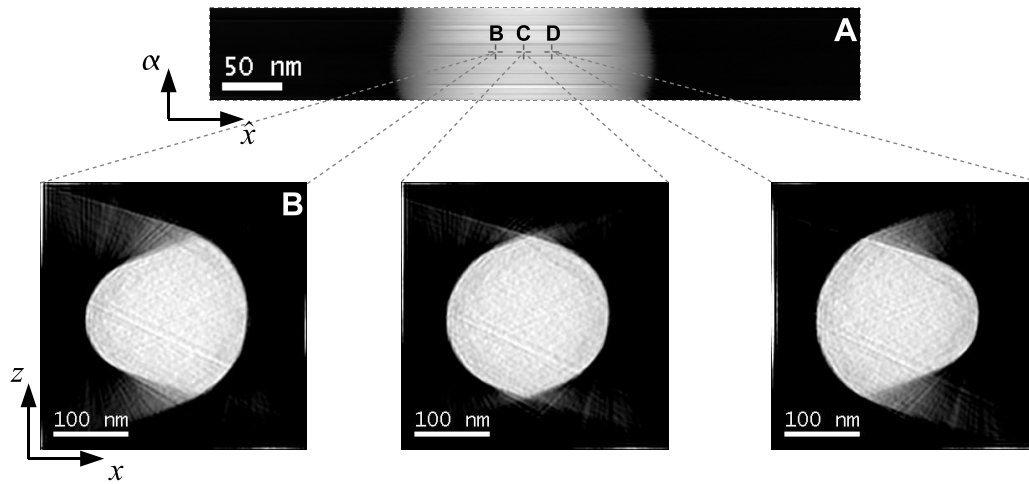


Abbildung 5.20.: Ermittlung des Schnittpunktes mit der projizierten Kippachse im Sinogramm. Das experimentelle Sinogramm (A) wird mittels gewichteter Rückprojektion rekonstruiert und dabei das Rotationszentrum von (B)-(D) variiert. Die Rekonstruktionen (B) und (D) zeigen die typischen 'bogenförmigen' Artefakte, da das Rotationszentrum links (B) oder rechts (D) neben dem Schnittpunkt mit der projizierten Kippachse liegt. Erst wenn letzteres und Rotationszentrum der Rückprojektion übereinstimmen, sind diese Artefakte verschwunden (C).

im Sinogramm einer vertikalen Linie  $\hat{x} = \hat{x}_0$ <sup>18</sup>. Je nach zunächst frei gewählter Position  $\hat{x}_0$  erhält man, wie in Abbildung 5.20 gezeigt, verschiedene Ergebnisse nach tomographischer Rekonstruktion des selben Sinogramms. Ist die gewählte Position falsch, so wird dies als bogenförmige Deformierung des rekonstruierten Objektes deutlich (Abb. 5.20 B und D). Ist dagegen die Position korrekt, so wird das Objekt artefaktfrei rekonstruiert (C).

Der auf diese Weise gefundene Punkt  $(\hat{x}_0, y_i)$  entspricht den Schnittpunkt mit der projizierten Kippachse.

Bei Durchführung der oben beschriebenen Prozedur für drei Sinogramme, welche an verschiedenen Positionen  $y_i$  aus der Kippserie extrahiert werden (Abb. 5.21), ergeben sich drei Werte  $\hat{x}_i$ . Aus den drei Wertepaaren  $(\hat{x}_i, y_i)$  lässt sich durch Lineare Regression die Gerade

$$y = \tan(\phi_0)(\hat{x} - \hat{x}_0), \quad (5.14)$$

finden. Diese enthält die gesuchte Information über die Lage der projizierten Kippachse in der Kippserie, d.h. deren Position  $\hat{x}_0$  und deren Orientierung  $\phi_0$  bzgl. der  $\hat{x}$ -Achse.

Zur Ausrichtung wird die Kippserie um  $x_0$  verschoben, und um  $90^\circ - \phi_0$  rotiert. Damit entsprechen die projizierte Kippachse der senkrechten Mittellinie

<sup>18</sup> $\hat{x}_0$  entspricht in Abb. 4.4 dem Koordinatenursprung  $l = 0$ .

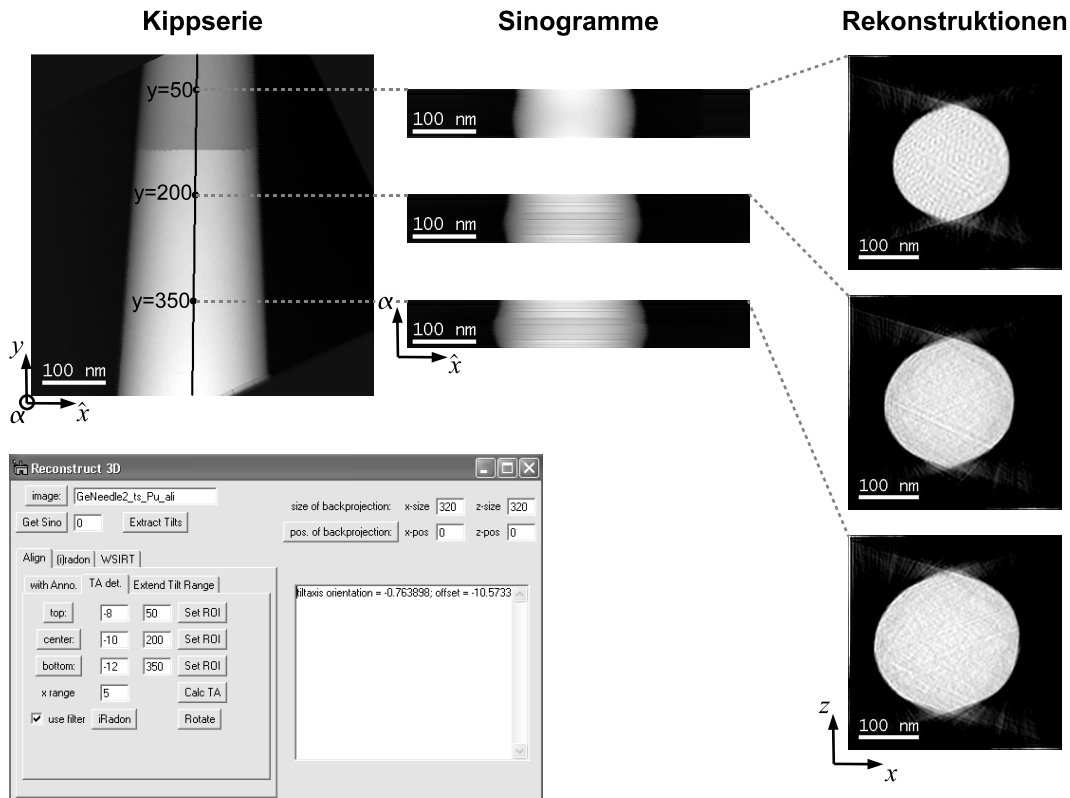


Abbildung 5.21.: Identifizierung der Lage der projizierten Kippachse in der Kippserie am Beispiel einer nadelförmigen Germanium-Probe. Dazu werden drei Sinogramme aus der Kippserie extrahiert und deren Schnittpunkte mit der projizierten Kippachse auf die oben beschriebene Weise bestimmt. Diese Prozedur ist in die selbstentwickelte *Reconstruct 3D* Software (unten links) integriert.

und die Sinogramme den waagerechten Ebenen der Kippserie. Die nachfolgende 3D-Rekonstruktion erfolgt zeilenweise durch Anwendung der zweidimensionalen W-BP, SIRT (Abschn. 4.3) oder W-SIRT (Abschn. 5.5) auf die Sinogramme.

#### 5.4.4. Identifizierung dynamischer Phasenschiebungen

Die Gültigkeit der in Abschnitt 2.1.2 eingeführten sogenannten Phase-Grating Näherung (PGA, Gl. 2.6) ist für die Anwendbarkeit der EHT von entscheidender Bedeutung (Abschn. 4.2.3). Die PGA gilt jedoch nur, solange dynamische Streuung in der Probe nicht dominiert (Abschn. 2.1.2).

Die von der Kippung  $\alpha$  abhängigen dynamischen Effekte in einer Phasenkippserie lassen sich im Sinogramm  $\varphi(\hat{x}, \alpha)$  gut identifizieren. Dies verdeutlicht das Phasensinogramm der nadelförmigen Germanium-Probe in Abbildung 5.22 (A): Einige Linien sind infolge dynamischer Effekte deutlich heller oder dunkler als die restlichen Linien. Die dementsprechend zu hohen oder zu niedrigen

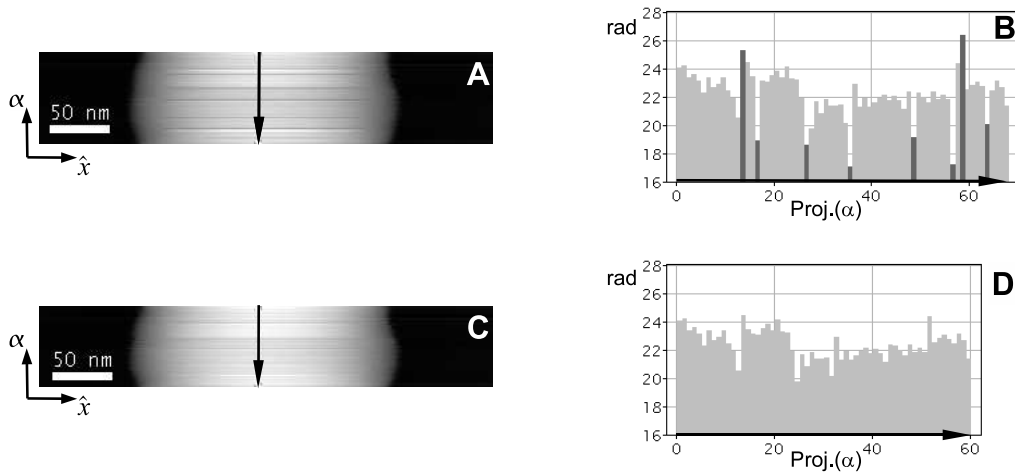


Abbildung 5.22.: Identifizierung dynamischer Phasenschiebungen im Sinogramm.

**A:** Sinogramm der Phasen-Kippserie einer nadelförmigen Ge Probe.

**B:** Vertikales Linienprofil entlang des Pfeils in (A). Darin sind die jeweiligen Kippungen dunkelgrau markiert, die dynamische Phasenschiebungen enthalten.

**C:** Sinogramm nach Entfernen der Projektionen mit dynamischen Phasenschiebungen.

**D:** Vertikales Linienprofil entlang des Pfeils in (C).

Phasenschiebungen sind durch dunkelgraue Linien im vertikalen Linienprofil (B) des Sinogramms markiert. Nach Entfernen der entsprechenden Projektionen sind die Abweichungen im Sinogramm zwischen den einzelnen Linien weniger stark (Abb. 5.22 C,D).

Wie groß der Einfluss der dynamischen Effekte auf die Genauigkeit des rekonstruierten 3D-Potentials dieser nadelförmigen Germanium-Probe ist, wird später in Abschnitt 5.5.10 genauer analysiert.

## 5.5. Tomographische Rekonstruktion mittels W-SIRT

Zur tomographischen Rekonstruktion von in Ein-Achsen-Geometrie aufgezeichneten Kippserien wurde die Gewichtete (Weighted) Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (W-SIRT) basierend auf einer konventionellen SIRT (Abschn. 4.3.2) entwickelt. Der entscheidende Unterschied zur SIRT besteht darin, dass während jeder Iteration anstelle einer Einfachen eine Gewichtete Rückprojektion (Abschn. 4.3.1) ausgeführt wird. Da die W-SIRT Daten vom Typ reeller Gleitkommazahlen (*float numbers, single precision*) verarbeitet, und die laterale Kalibrierung ( $nm/pixel$ ) der Eingangsdaten berücksichtigt, rekonstruiert



sie aus der Kippserie des projizierten Potentials (nach Gl. 2.6  $\varphi/C_E$ ) direkt das elektrostatische 3D-Potential<sup>19</sup>.

Die Kernpunkte des W-SIRT-Algorithmus' sind in Abschnitt 5.5.1 und 5.5.2 beschrieben. Es zeigt sich, dass die W-SIRT im Vergleich zur konventionellen SIRT deutlich schneller konvergiert (Abschn. 5.5.3) und bei Missing Wedge genauere Ergebnisse liefert (Abschn. 5.5.4).

Dennoch enthält auch ein mit W-SIRT berechnetes Tomogramm bei Missing Wedge Artefakte (Abschn. 5.5.5), die zu Problemen bei der quantitativen Auswertung führen können (Abschn. 5.5.6, 5.5.7). Bei symmetrischen Objekten können diese Probleme vermieden werden, indem Projektionen aus dem vorhandenen Winkelbereich der Symmetrie entsprechend mehrmals benutzt werden, um den Winkelbereich für die Rekonstruktion zu erweitern (Abschn. 5.5.8).

Schließlich werden auch die Einflüsse des Rauschens (Abschn. 5.5.9) und der dynamischen Streuung (Abschn. 5.5.10) diskutiert. Dabei wird vor allem untersucht, wie sich diese beiden Einflüsse auf das rekonstruierte 3D-Potential auswirken.

### 5.5.1. W-SIRT - Implementierung

Die Gewichtete (Weighted) SIRT (W-SIRT) wurde in DM-Skriptsprache implementiert. Dabei wurden die rechenintensivsten Schritte, Projektion und Rückprojektion, in der Programmiersprache Visual C++ umgesetzt. Bei der Implementierung wurde das sogenannte *multi-threading* zur Parallelisierung der Algorithmen verwendet, damit die volle Rechenleistung der heutigen Multi-Kern-Prozessoren ausgenutzt werden kann. Infolge dieser Maßnahmen konnte die Rechenzeit für eine 3D-Rekonstruktion deutlich reduziert werden. Die kompilierten Algorithmen für Projektion und Rückprojektion werden DM als Funktionen über einen Plug-In in einer Bibliothek-Datei (*dynamic link library, dll*) zur Verfügung gestellt.

Die wesentlichste Modifikation in der W-SIRT gegenüber der 'Standard'-SIRT ist die Verwendung der Gewichteten Rückprojektion (W-BP), sowohl zu Beginn als auch in jeder Iteration. Dabei wird ein *exaktes* Gewichtungsfiler benutzt, welches im folgenden Abschnitt noch näher erläutert wird.

Die Anwendung der W-BP hat jedoch den Nachteil, dass an den Rändern der rückprojizierten Verteilung Artefakte (Überschwinger) infolge des Filters im Fourierraum auftreten. Um diese zu unterdrücken, wird die rückprojizierte Verteilung innerhalb eines mehrere Pixel breiten Randbereiches zu Null gedämpft. Damit wird erreicht, dass in der nächsten Iteration die Artefakte nicht zur Projektion beitragen.

In Abbildung 5.23 ist die Benutzeroberfläche der selbstentwickelten tomographischen Rekonstruktions-Software "*Reconstruct 3D*" gezeigt, über welche die Parameter der W-SIRT (z.B. Zahl der Iterationen, Filtertyp, Breite des

<sup>19</sup>Zum Beispiel kann die Inspect3D-Software der Firma FEI (Eindhoven, The Netherlands) nur ganzzahlige Werte verarbeiten. Zudem wird das Ergebnis der 3D-Rekonstruktion auf dem Mittelwert Null skaliert und ist daher nicht ohne Weiteres quantitativ interpretierbar.

Randbereichs) bequem eingestellt werden können.

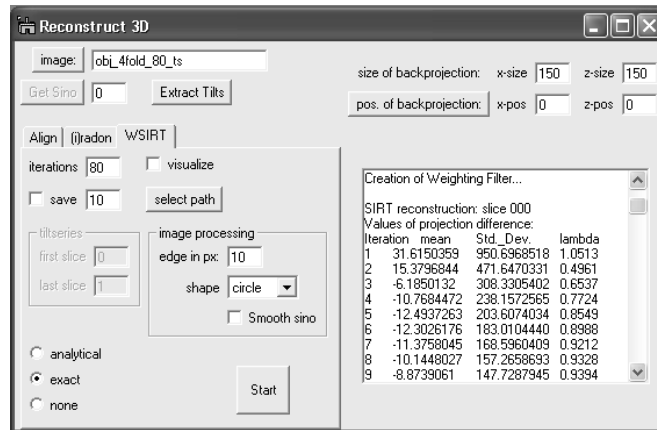


Abbildung 5.23.: Benutzeroberfläche der Software “*Reconstruct 3D*” zur 3D-Rekonstruktion mittels W-SIRT.

### 5.5.2. Gewichtungsfiler

Bei der Gewichteten Rück-Projektion (W-BP) wird die falsche Gewichtung der Raumfrequenzen nach der Einfachen Rückprojektion (BP) durch ein Gewichtungsfiler im Fourierraum korrigiert (Abschn. 4.3.1). Wie in Abbildung 4.7 exemplarisch gezeigt, liefert ein *exaktes* Gewichtungsfiler i.d.R. bessere Ergebnisse als ein *analytisches*.

Aus diesem Grunde wurde auch im W-SIRT ein *exaktes* Gewichtungsfiler verwendet, für dessen Erzeugung im folgenden die wesentlichen Schritte aufgelistet sind:

1. Berücksichtigung der Abtastung im Fourierraum durch eine Projektion. Dazu wird für jede Projektionsrichtung die entsprechende 3-pixel-breite<sup>20</sup> Linie vom Wert 1 durch bilineare Interpolation erzeugt (Abb. 5.24 A).
2. Summation über alle Linien. Daraus ergibt sich die Verteilung in Abb. 5.24 (B).
3. Erzeugung des Gewichtungsfiler. Dazu wird die nach Schritt 2 erhaltene Verteilung zunächst durch die Anzahl der Kippwinkel  $N_\alpha$  dividiert und dann deren reziproke Verteilung berechnet. Zum Schluss werden alle Pixelwerte die größer sind als  $N_\alpha$  auf den Wert  $N_\alpha$  gesetzt (Abb. 5.24 C).

Der Schwellenwert  $N_\alpha$  in dem so erzeugten Gewichtungsfiler bewirkt, dass die nach einfacher Rückprojektion entstandene Unterabtastung der hohen

<sup>20</sup>Die Benutzung von 3 Pixeln ist bei experimentellen Daten (Rauschen, dynamische Effekte) und größerem Winkelinkrement stabiler. Dagegen liefert die Benutzung von 1-pixel-breiten Linien bei idealen Projektionen und bei sehr kleinem Winkelinkrement exaktere Ergebnisse.

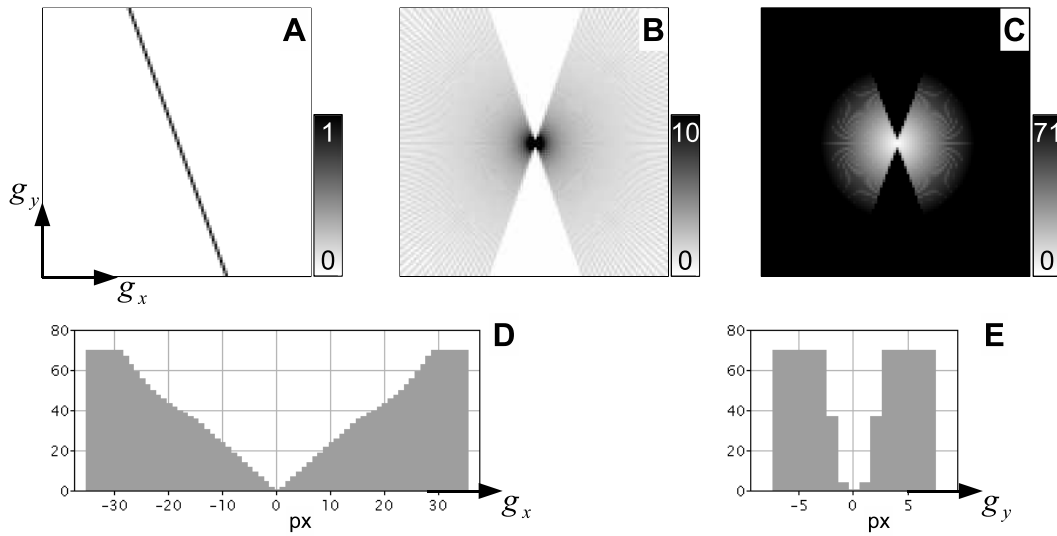


Abbildung 5.24.: Erzeugung eines exakten Gewichtungsfilters im Fourierraum.

**A:** Abtastlinie durch die FT der Projektion bei  $-70^\circ$ .

**B:** Summe aller  $N_\alpha = 71$  Abtastlinien von  $\pm 70^\circ$  ( $2^\circ$  Schrittweite).

**C:** Aus (B) erzeugter Gewichtungsfilter.

**D/E:** Linienprofile durch (C) in horizontaler und vertikaler Richtung.

Raumfrequenzen und der im Missing Wedge maximal um das  $N_\alpha$ -fache korrigiert wird. Dadurch werden hohe Raumfrequenzen, die bei experimentellen Daten meist ein geringes SNR besitzen, nicht zu sehr verstärkt. Letzteres wird bei anderen Gewichtungsfilters häufig durch Multiplikation mit einem zusätzlichen, relativ willkürlich gewählten Tiefpassfilter gelöst.

Zwar ist auch die Gewichtete Rückprojektion bei Benutzung des hier vorgestellten Gewichtungsfilters nicht perfekt, die verbleibenden Unzulänglichkeiten in der Rekonstruktion können aber im W-SIRT iterativ korrigiert werden. Die damit erzielten Verbesserungen werden in den nächsten beiden Abschnitten deutlich.

### 5.5.3. Konvergenz

Um die Überlegenheit der W-SIRT gegenüber der SIRT bzgl. des Konvergenzverhaltens zu demonstrieren, wird das Shepp-Logan Phantom [Shepp (1980)] aus dessen Sinogramm (Kippbereich  $-90^\circ, -89, \dots, 89$ ) mit beiden Techniken wieder rekonstruiert. Nach jedem Iterationsschritt  $q$  wird der mittlere euklidische Abstand (Diskrepanz)

$$\Delta = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (\rho_n^{rec} - \rho_n)^2} \quad (5.15)$$

## 5. Holographische Tomographie

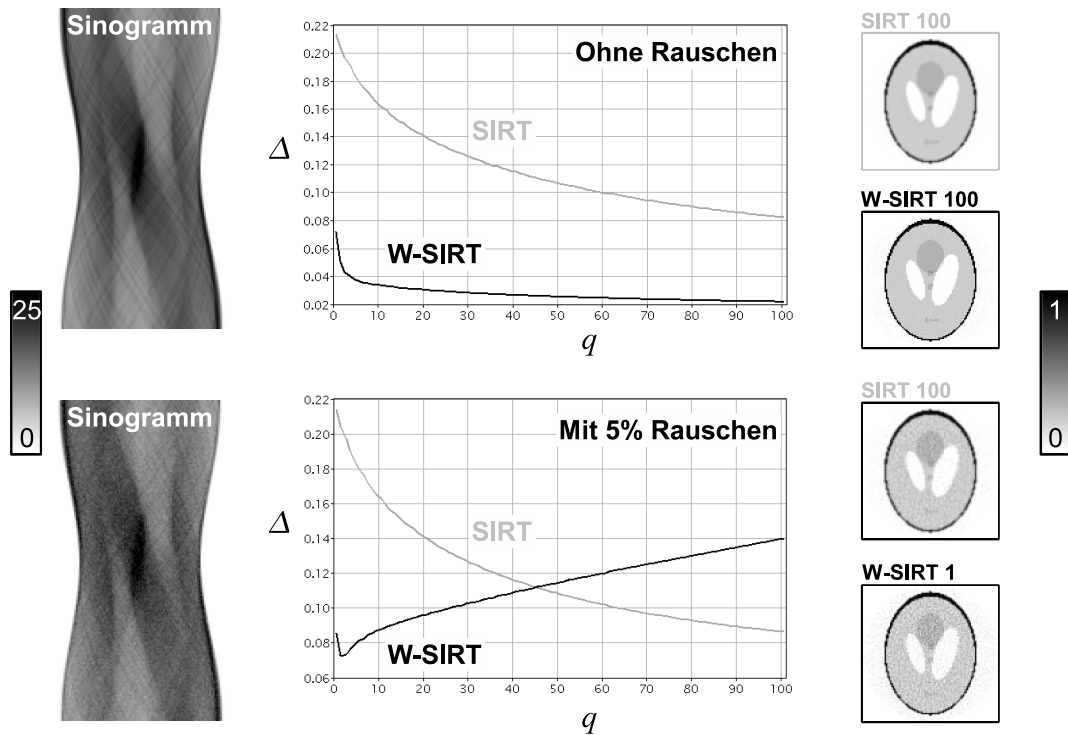


Abbildung 5.25.: Vergleich des Konvergenzverhaltens zwischen SIRT und W-SIRT.  
 Links: Sinogramme des Shepp-Logan Phantoms.  
 Mitte: Euklidischer Abstand  $\Delta$  (Gl. 5.15) in Abhängigkeit von der Anzahl der Iterationen  $q$ .  
 Rechts: Rekonstruktionen des Shepp-Logan Phantoms.

zwischen ursprünglicher und rekonstruierter Verteilung  $\rho$  und  $\rho^{rec}$  berechnet. Die Mittelung erfolgt dabei über die  $N$  Pixelwerte von  $\rho_n$  und  $\rho_n^{rec}$ . Das Ergebnis ist in Abbildung 5.25 dargestellt. Dabei wird außerdem zwischen den Konvergenzverhalten bei rauschfreien (oben) und rauschbehafteten Sinogrammen (unten) unterschieden. Rauschen wird erzeugt, indem zu jedem Pixelwert des Sinogramms eine Zufallszahl addiert wird, welche aus einer Normalverteilung mit Standardabweichung von 5% des Pixelwertes generiert wurde.

Die beiden Graphen in Abbildung 5.25 zeigen den mittleren euklidischen Abstand  $\Delta$  als Funktion der Anzahl der Iterationen  $q$ . Der obere Graph verdeutlicht, dass ohne Rauschen die W-SIRT schneller und näher als die SIRT zur ursprünglichen Verteilung konvergiert. Aus dem unteren Graph ist ersichtlich, wie sich SIRT bei Rauschen robuster verhält, während die W-SIRT sogar divergiert. Dennoch ist auch hier der schon nach einer Iteration erreichte minimale Abstand der W-SIRT kleiner als der Abstand der SIRT nach 100 Iterationen.

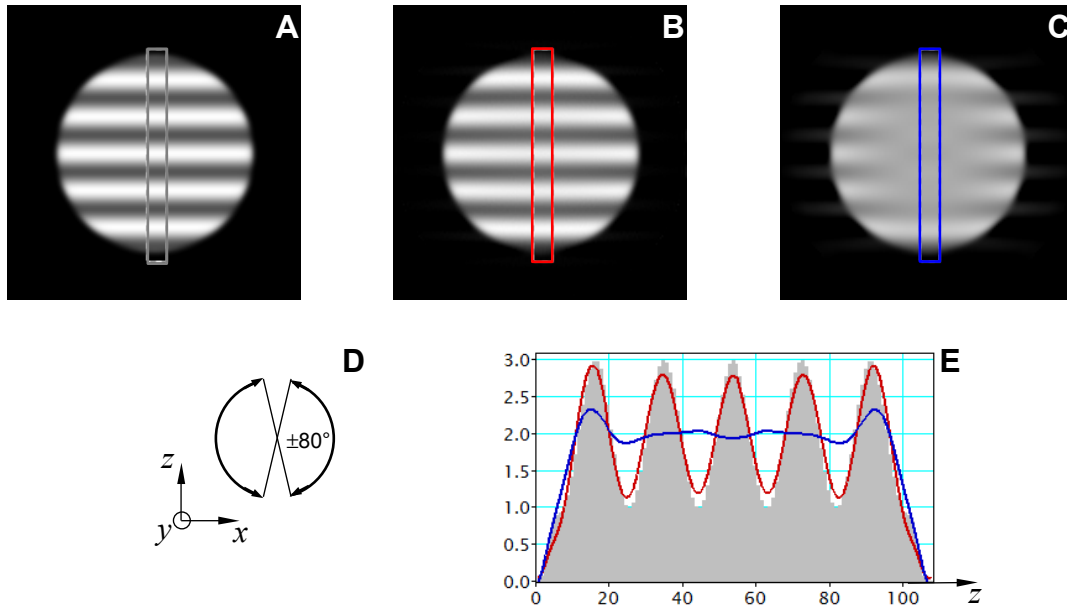


Abbildung 5.26.: Vergleich der rekonstruierbaren  $z$ -Auflösung bei Missing Wedge zwischen konventioneller SIRT und selbstentwickelter W-SIRT.

**A:** Sphärische Teststruktur mit sinusförmiger  $z$ -Modulation.

**B:** W-SIRT Rekonstruktion nach 200 Iterationen des aus (A) berechneten Sinogramms (Winkelbereich  $\pm 80^\circ$ , Schrittweite  $2^\circ$ ).

**C:** SIRT Rekonstruktion nach 200 Iterationen aus selbigem Sinogramm.

**D:** Darstellung des Winkelbereichs.

**E:** Linienprofile entlang der Rechtecke in (A-C).

#### 5.5.4. $z$ -Auflösung bei Missing Wedge

Wegen der in Abschnitt 4.3.4 genannten Probleme steht für die ET meist nur ein Winkelbereich von ca.  $\pm 60^\circ$  bis maximal  $\pm 80^\circ$  zur Verfügung. Der daraus resultierende Missing Wedge in den Tomogrammen reduziert die Auflösung in den entsprechenden Richtungen dramatisch. Die Frage, wie hoch die Auflösung des Tomogramms letztlich ist, ist jedoch nicht ausschließlich durch den experimentellen Winkelbereich gegeben, sondern hängt auch von der Leistungsfähigkeit des Rekonstruktions-Algorithmus' ab. Dies zeigt der folgende Vergleich der beiden mittels W-SIRT und SIRT rekonstruierten Ergebnisse eines Testobjektes.

Als Testobjekt diene die in Abb. 5.26 (A) dargestellte sphärische Verteilung mit sinusförmiger  $z$ -Modulation. Aus diesem wurde zunächst ein Sinogramm mit einem Winkelbereich von  $\pm 80^\circ$  und einer Schrittweite von  $2^\circ$  berechnet. Daraus wurde wieder das Testobjekt rekonstruiert. Das Tomogramm der W-SIRT (B) zeigt im Gegensatz zu dem der SIRT (C), wieder die  $z$ -Modulation. Somit besitzt das mit der W-SIRT rekonstruierte Tomogramm eine höhere interpretierbare Auflösung.

Es ist möglich, die in  $z$ -Richtung verlaufende Modulation auch bei Missing Wedge

zu rekonstruieren, da das Objekt eine endliche Ausdehnung in  $x$ -Richtung (Breite) besitzt. Bereits in der Fouriertransformierten der Einfachen Rückprojektion liegt die dafür notwendige Information vor, wenn auch stark gedämpft: Die Information über die Sinus-Modulation (Reflexe) befindet sich in den zentralen Schnitten, die den hohen Kippwinkeln entsprechen. Die Reflexe werden aufgrund der endlichen Breite (Information aus niedrigen Kippwinkeln) in  $x$ -Richtung ausgeschmiert. Je schmaler das Objekt, desto breiter ist die Ausschmierung, die in den Missing Wedge hineinreicht. Der Gewichtungsfiler und jede weitere Iteration der W-SIRT sorgen dafür, dass die Information im Missing Wedge mehr und mehr verstärkt wird, und die Sinusmodulation wieder rekonstruiert werden kann. Jedoch ist dafür eine Vielzahl von Iterationen (im Beispiel 200) nötig.

Im Gegensatz dazu ist die korrekte Rekonstruktion mittels (nur einmaliger) Gewichteter Rückprojektion oder mittels SIRT nicht möglich.

Diese Untersuchung zeigt die Schwierigkeit, selbst ohne Rauschen und bei einem relativ hohen Winkelbereich von  $\pm 80^\circ$ , diese eher niederfrequente Modulation in  $z$ -Richtung zu rekonstruieren. Deshalb sind die Fähigkeiten der ET, bspw. zur Rekonstruktion von in  $z$ -Richtung liegenden dünnen Schichtstrukturen, begrenzt, sofern nicht der volle Winkelbereich von  $\pm 90^\circ$  zur Verfügung steht.

### 5.5.5. Artefakte bei Missing Wedge

Der Einfluss des Missing Wedge auf Tomogramme, die mittels W-SIRT rekonstruiert wurden, ist nicht generell beschreibbar. Die Elongation in  $z$ -Richtung (Abschn. 4.3.4), ist in den Tomogrammen zwar immer noch vorhanden, jedoch hängt diese ebenso von der Zahl der benutzten Iterationen ab. Des Weiteren hat der vorherige Abschnitt gezeigt, dass das Objekt selbst dabei eine Rolle spielt: Je nach Form, Größe und Position des Objektes führt der Missing Wedge zu verschiedenen Artefakten. Um dies zu illustrieren, sind in Abbildung 5.27 W-SIRT Rekonstruktionen aus Sinogrammen ( $\pm 70^\circ$  Kippwinkelbereich,  $2^\circ$  Schrittweite) verschiedener Objekte gezeigt.

### 5.5.6. Konvergenz bei Missing Wedge

Während der W-SIRT konvergiert der mittlere euklidische Abstand zwischen dem experimentellen und dem nach jeder Iteration neu berechneten Sinogramm zu einem Minimum. Jedoch muss dies bei Missing Wedge (oder auch Rauschen, s. Abschn. 5.5.3) nicht zwangsläufig bedeuten, dass dabei auch der Abstand zwischen rekonstruierter und "wahrer" Verteilung minimiert wird.

Anhand des in Abb. 5.28 (A) gezeigten Quadrates als Testobjekt wird das Konvergenzverhalten der W-SIRT bei Missing Wedge (Winkelbereich  $\pm 70^\circ$ ) untersucht. Dazu wird der mittlere euklidische Abstand  $\Delta$  (Gl. 5.15) zwischen Testobjekt und dessen W-SIRT-Rekonstruktion in Abhängigkeit von der Anzahl der Iterationen  $q$  ausgewertet. Außerdem soll nur für den in Abb. 5.28 (A) und (C) schwarz-weiss markierten Bereich ein Optimum bzgl. einer konstanten Verteilung

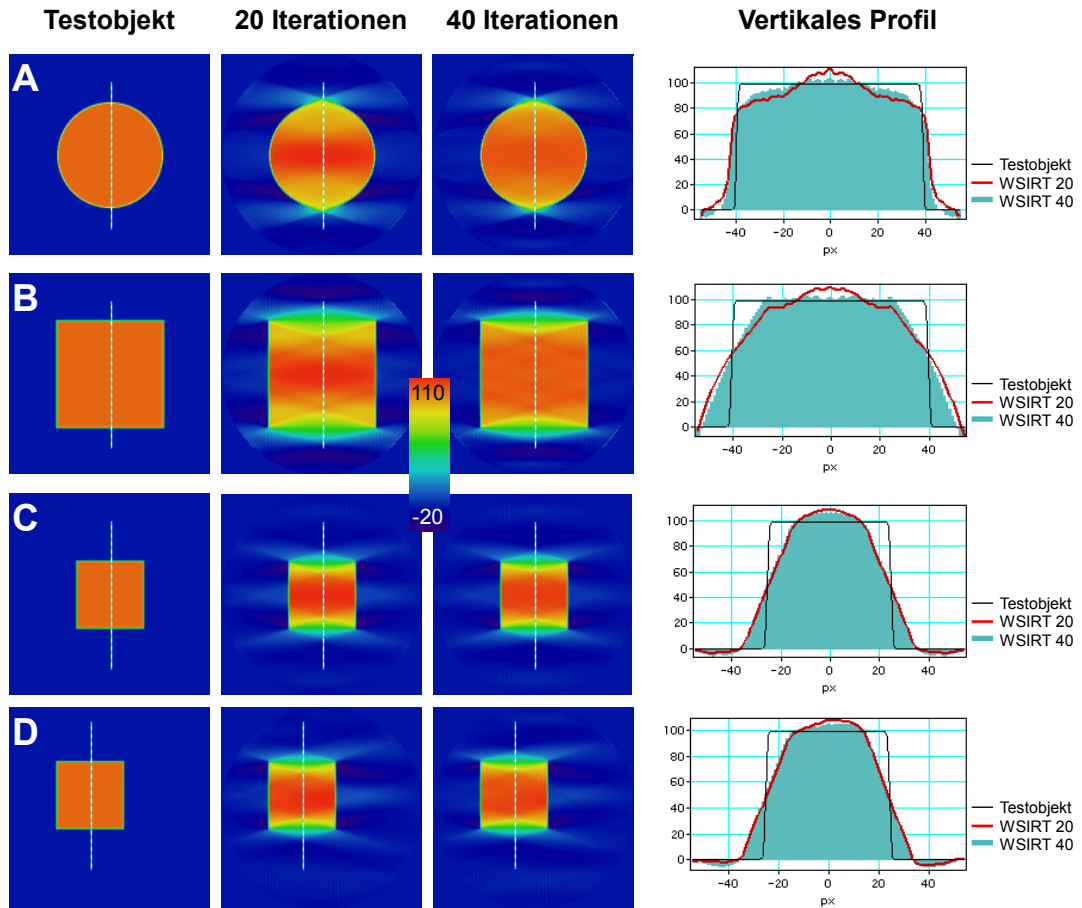


Abbildung 5.27.: W-SIRT Rekonstruktionen verschiedener Testobjekte bei einem Missing Wedge von  $\pm 20^\circ$ . Zwischen (A) und (B) wurde die Form, zwischen (B) und (C) die Größe und zwischen (C) und (D) die Position variiert. Dementsprechend ändern sich auch die Artefakte des Missing Wedge, welche außerdem von der Anzahl der Iterationen abhängen.

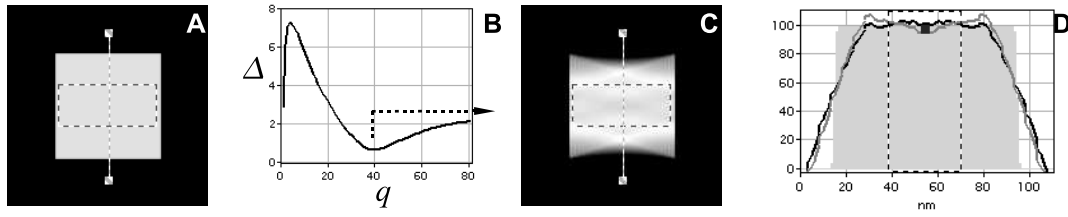


Abbildung 5.28.: Konvergenzverhalten von W-SIRT bei Missing Wedge.

**A:** Testobjekt.

**B:** Mittlerer euklidischer Abstand  $\Delta$  (Gl. 5.15) zwischen Testobjekt und Rekonstruktion ( $\pm 70^\circ$  Winkelbereich) in Abhängigkeit von der Anzahl der Iterationen  $q$ .

**C:** Rekonstruktion nach 39 Iterationen.

**D:**  $z$ -Profil von Testobjekt (grau ausgefüllt), nach 39 Iterationen (schwarze Linie) und nach 80 Iterationen (graue Linie).

im Tomogramm gefunden werden, weswegen zur Bestimmung von  $\Delta$  auch nur über diesen Bereich gemittelt wird.

Das Ergebnis der Auswertung zeigt das Diagramm in Abb. 5.28 (B). Anhand des Minimums des Graphen lässt sich eine optimale Anzahl der Iterationen für die Rekonstruktion des schwarz-weiß markierten Bereichs bei  $q_{opt} = 39$  finden. Das nach 39 Iterationen berechnete Tomogramm ist in (C), und dessen  $z$ -Profil als schwarze Linie in (D) dargestellt. In (D) ist auch das  $z$ -Profil des Testobjektes (grau ausgefüllt) und der W-SIRT-Rekonstruktion nach 80 Iterationen (graue Linie) gezeigt. Das Tomogramm nach 80 Iterationen weicht schon deutlich mehr vom Testobjekt ab als das nach 39 Iterationen.

Aus diesem Beispiel können sicherlich keine generellen Schlüsse gezogen werden. Dennoch verdeutlicht dies, dass eine höhere Anzahl an Iterationen nicht zwangsläufig zu einer höheren Qualität (Maß dafür Konvergenz) führt, vor allem wenn nur bestimmte Bereiche des Tomogramms betrachtet werden.

### 5.5.7. Lineare Korrektur bei Missing Wedge

Eine wichtige Information, die man aus dem mittels EHT rekonstruierten 3D-Potential  $V(x, y, z)$  gewinnt, ist das Mittlere Innere Potential (MIP)  $V_0$  (Abschn. 2.1.1). In der Regel lässt sich bei homogenen Objekten das MIP einfach als Peak im Histogramm des 3D-Potentials identifizieren. Jedoch sind es wiederum die Artefakte des Missing Wedge, welche die Genauigkeit des auf diese Weise bestimmten Wertes für  $V_0$  reduzieren.

Dieses Problem veranschaulicht Abbildung 5.29 am Beispiel einer Latexkugel (Abschn. 6.2). Darin ist oben ein  $(x, z)$ -Schnitt durch das mittels W-SIRT (5 Iterationen) rekonstruierte 3D-Potential und dessen Histogramm gezeigt. In letzterem wird anhand des Peaks ein Wert von  $V_0^{exp,rec} = 6.8V$  abgelesen.

Es lässt sich zeigen, dass dieser Wert aufgrund des Missing Wedge zu klein ist: Dazu wird zunächst aus einem Modell der Latexkugel mit  $V_0^{sim} = 8.5V$



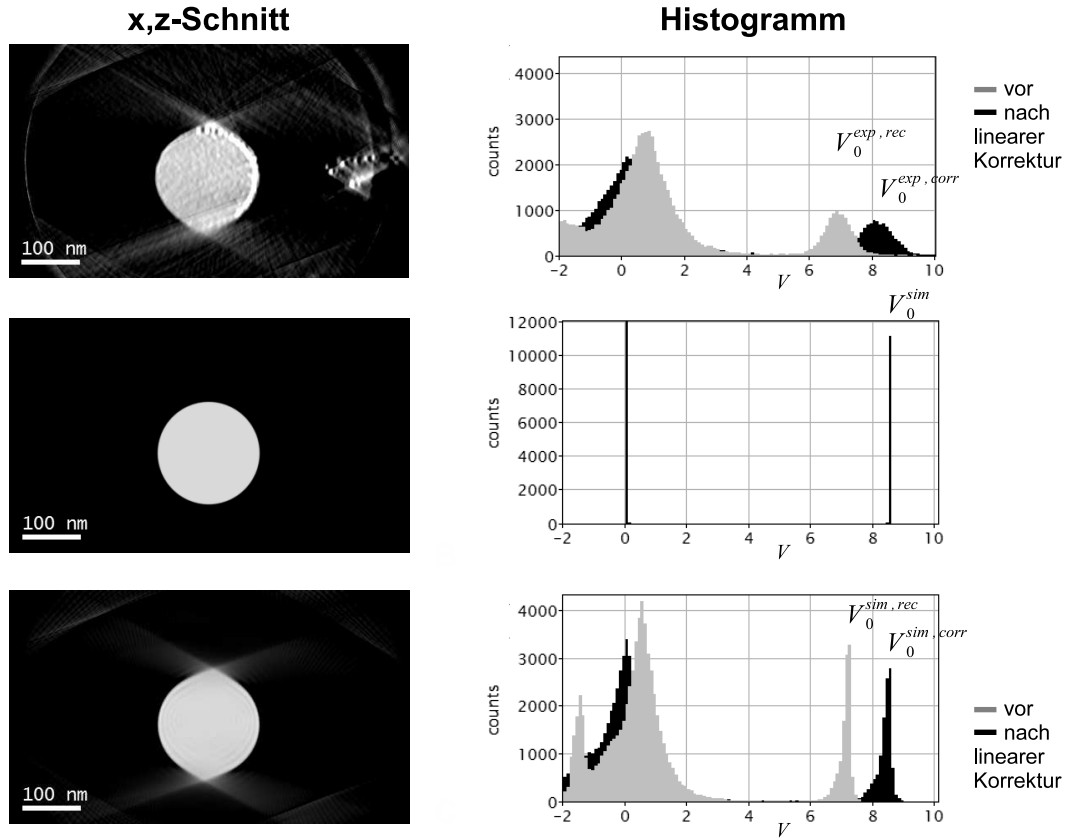


Abbildung 5.29.: Lineare Korrektur der W-SIRT Rekonstruktion.

oben:  $(x, z)$ -Schnitt des rekonstruierten 3D-Potentials einer Latexkugel.

mitte: Modell der Latexkugel mit  $V_0 = 8.5V$ .

unten: W-SIRT-Tomogramm des Modell, rekonstruiert aus identischem Kippbereich wie im Experiment.

(Abb. 5.29, mitte) ein Sinogramm berechnet, und anschließend wieder mittels W-SIRT rekonstruiert. Dabei werden zum Experiment identische Parameter verwendet (gleicher Missing Wedge, gleiche W-SIRT Iterationen). Das Resultat dieser Prozedur ist in Abbildung 5.29 unten dargestellt. Das Histogramm der W-SIRT Rekonstruktion besitzt jedoch nicht einen Peak bei  $V_0^{sim} = 8.5V$ , sondern lediglich bei  $V_0^{sim,rec} = a \cdot V_0^{sim} = 7.2V$ . Der Faktor  $a$  gibt hier an, auf welchen Bruchteil der wahre Wert  $V_0^{sim}$  allein durch die W-SIRT Rekonstruktion bei Missing Wedge verringert wird. Die Kenntnis von  $a = V_0^{sim,rec}/V_0^{sim}$  kann ausgenutzt werden, um die experimentelle Potentialverteilung  $V_{i,j}^{rec}$  mithilfe der Vorschrift

$$V_{i,j}^{corr} = a^{-1} V_{i,j}^{rec} \quad (5.16)$$

zumindest linear zu korrigieren. Bei Anwendung dieser Vorschrift auf die Simulation wird nach der Korrektur  $V_0^{sim,rec} = V_0^{sim}$ , wie die Peaks in den Histogrammen in

Abb. 5.29 (unten) zeigen.

Es muss hier betont werden, dass die genaue Kenntnis des MIP  $V_0^{sim}$  für die Korrektur nicht notwendig ist, weil der Faktor  $a$  nur vom Verhältnis  $V_0^{sim,rec}/V_0^{sim}$  und nicht von den absoluten Größen abhängt. Dagegen hängt  $a$  sehr wohl vom Missing Wedge und der Anzahl der verwendeten Iterationen ab, wodurch sich diese Einflüsse zumindest in Bezug auf die Bestimmung des MIP einer homogenen 3D-Potentialverteilung korrigieren lassen.

Schließlich führt im experimentellen Fall die Anwendung der Korrekturformel 5.16 bei der Latexkugel zu  $V_0^{exp,corr} = 8.0V$ , wie das Histogramm in Abb. 5.29 (oben) aufzeigt. Dieser Wert stimmt nun deutlich besser mit dem Literaturwert von  $V_0 = (8.5 \pm 0.7)V$  überein [Wang et al. (1998)].

Der Nachteil ist jedoch, dass der zu  $V_0$  gehörende Peak nach der Korrektur breiter ist als vor der Korrektur. Demzufolge ist auch die MIP-Bestimmung weniger präzise. Zudem hängt die Genauigkeit der Methode immer auch davon ab, wie gut das Modell dem experimentellen 2D-Querschnitt entspricht, und wie repräsentativ dieser einzelne Querschnitt für das gesamte 3D-Objekt ist.

### 5.5.8. Ausnutzung der Objektsymmetrie bei Missing Wedge

Die in den vorangegangenen Abschnitten verdeutlichten Probleme infolge des Missing Wedge schränken die quantitative Auswertung der mittels EHT rekonstruierten 3D-Potentiale nicht unerheblich ein.

Dennoch ist es in einigen Fällen möglich, mithilfe von Symmetrieannahmen die experimentelle Kippserie im Nachhinein so zu erweitern, dass dadurch der volle Winkelbereich für die Rekonstruktion zur Verfügung steht. Dazu muss für die experimentelle Kippserie zum einen in guter Näherung gelten, dass das darin abgebildete Objekt eine hohe Symmetrie<sup>21</sup> aufweist. Dies sollte sowohl bzgl. dessen Form als auch bzgl. dessen intrinsischer Verteilung erfüllt sein. Zum andern müssen in der Kippserie Kippachse und Symmetrieachse des Objektes parallel zueinander liegen. Sind diese beiden Bedingungen erfüllt, kann wie am Beispiel des Quadrates in der Abbildung 5.27 veranschaulicht, die Symmetrie für die Erweiterung des Kippwinkelbereichs zu  $\pm 90^\circ$  ausgenutzt werden.

Einige der in dieser Arbeit untersuchten Proben erfüllen die obigen Voraussetzungen, um die hier gezeigte Methode auch für den experimentellen Fall anzuwenden. Die mittels FIB präparierte,  $pn$ -dotierte Silizium-Nadel (Abschn. 6.3.2) ist solch eine Probe. In Abbildung 5.31 ist das 3D-Potential dargestellt, für dessen Rekonstruktion (A) der experimentelle Winkelbereich von  $\pm 70^\circ$ , und (B) der volle Winkelbereich von  $\pm 90^\circ$  zur Verfügung steht. Um für (B) die fehlenden Projektionen von  $+70^\circ$  bis  $+90^\circ$  ( $-70^\circ$  bis  $-90^\circ$ ) zu erhalten, werden die Projektionen im Bereich von  $-20^\circ$  bis  $0^\circ$  ( $+20^\circ$  bis  $0^\circ$ ) wie oben beschrieben entsprechend der Proben-Symmetrie noch einmal verwendet. Sowohl das Volumen-Rendering (Abb. 5.31 oben) als auch die Querschnitte (Abb. 5.31 unten) zeigen klar die

<sup>21</sup>Die Symmetrie muss bspw. bei  $\pm 60^\circ$  mindestens dreizählig sein, damit aller  $120^\circ$  identische Projektionen vorhanden sind.

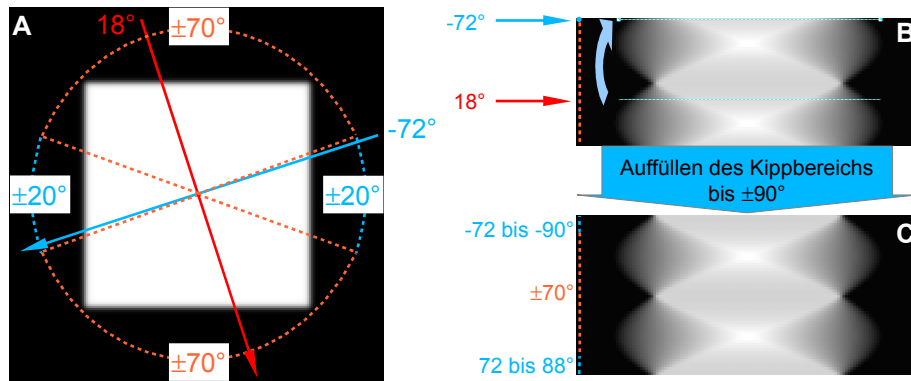


Abbildung 5.30.: Ausnutzung von Symmetrieanahmen zur Reduzierung des Missing Wedge. Die vierzählige Symmetrie des Quadrates (A) führt dazu, dass Projektionen modulo  $90^\circ$  identisch sind. Im hier gezeigten Fall sei der experimentelle Kippwinkelbereich  $\pm 70^\circ$  (orange) und der dem entsprechende Missing Wedge Bereich  $\pm 20^\circ$  (hellblau). Durch Nutzung der Äquivalenz der Projektionen bei  $-72^\circ$  und  $+18^\circ$  wird das Sinogramm wie in (B) gezeigt erweitert. Bei Wiederholung für den gesamten Kippbereich entsteht Sinogramm (C).

verbesserte Qualität der 3D-Daten in (B). Dies verdeutlicht auch der Vergleich der Linienprofile (C) in  $y$ - (oben) und in  $z$ -Richtung (unten). Bei Missing Wedge ist der Potentialverlauf im Zentrum viel zu hoch, während das Potential zum Rand hin in  $z$ -Richtung zu schnell abnimmt. Dadurch sind auch  $p$ -dotiertes (geringeres Potential) und  $n$ -dotiertes (höheres Potential) Gebiet im Volumen-Rendering schlechter zu unterscheiden.

Abschließend muss hier erwähnt werden, dass die experimentelle Aufnahme einer Kippserie über einen Winkelbereich von  $\pm 90^\circ$  immer dieser Methode zu bevorzugen ist. Tatsächlich ist es schon heute in wenigen Fällen möglich, durch gezielte Probenpräparation (Abschnitt 6.3.1) und geeignete Tomographie-Halter (bspw. der Firma E.A. Fischione Instruments, Inc., 9003 Corporate Circle, US (2006)) Kippserien über den vollen Winkelbereich aufzuzeichnen [Kawase et al. (2007)].

### 5.5.9. Einfluss von Rauschen

Die Rauschpropagation von der 2D-Phase in das rekonstruierte 3D-Potential wird hauptsächlich durch zwei gegensätzliche Faktoren bei der Gewichteten Rückprojektion bestimmt. Einerseits wird das Rauschen durch die bei der Rückprojektion stattfindenden Mittelung über die  $N_\alpha$  Projektionen verringert. Andererseits wird das Rauschen durch den Gewichtungsfiler im Fourierraum verstärkt. Zudem erhöht sich das Rauschen im Falle der W-SIRT bei jeder Iteration, wie Abbildung 5.25 (unten) zeigt.

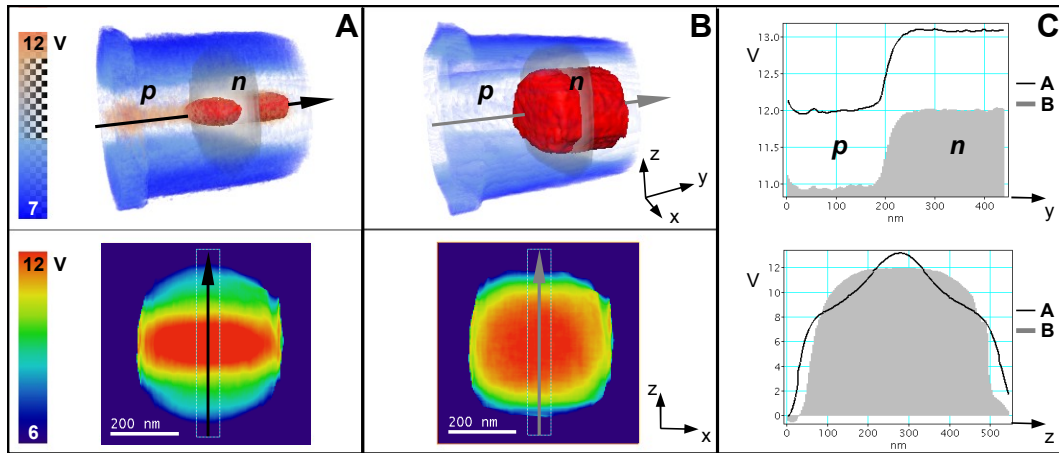


Abbildung 5.31.: Ausnutzung der vierzähligen Symmetrie für die 3D-Rekonstruktion einer mittels FIB präparierten, pn-dotierten Silizium-Nadel.

**A:** W-SIRT Rekonstruktion des 3D-Potentials aus den Projektionen des experimentellen Winkelbereichs von  $\pm 70^\circ$ .

**A:** W-SIRT Rekonstruktion des 3D-Potentials aus den Projektionen des erweiterten Winkelbereichs von  $\pm 90^\circ$  durch Ausnutzung der Symmetrie.

**A,B oben:** Volumen-Rendering

**A,B unten:** Querschnitte

**C:** Linienprofile in  $y$ -Richtung (oben) und in  $z$ -Richtung (unten).

Im Abschnitt 3.6 wurde bereits für den zweidimensionalen Fall die durch Phasenrauschen verursachte Potentialschwankung  $\hat{\sigma}_V$ <sup>22</sup> (Standardabweichung) und deren Abhängigkeit von der Objektdicke eingeführt. Sie lautet nach Gleichung (3.19)

$$\hat{\sigma}_V(t) = \frac{1}{t C_E \mu} \sqrt{\frac{2}{N_{0,rec}}} \exp\left(\frac{t}{\lambda}\right). \quad (5.17)$$

Dabei wurde aber betont, dass diese Beziehung für 2D-Potentialverteilungen gilt, welche aus dem projizierten Potential durch Mittelung über die als bekannt angenommene Objektdicke  $t$  bestimmt wurden.

Im dreidimensionalen Fall ist jedoch sowohl die Annahme der genauen Kenntnis der Dicke, als auch die Einschränkung, dass nur die in Projektionsrichtung gemittelte Potentialverteilung bestimmt werden kann, nicht mehr notwendig. Für die Potentialschwankung  $\sigma_V$  in rekonstruierten 3D-Potentialen wurde der Ausdruck

$$\sigma_V = \frac{1}{d C_E \mu} \sqrt{\frac{2}{N_{0,rec} N_\alpha}} \exp\left(\frac{t}{\lambda}\right). \quad (5.18)$$

empirisch gefunden, und durch Simulationen verifiziert. Darin steht jetzt anstelle der Objektdicke  $t$  die Kantenlänge eines Voxels  $d$  im Nenner, und die Anzahl der

<sup>22</sup>Zur Unterscheidung vom 3D-Fall wird im 2D-Fall:  $\sigma_V \rightarrow \hat{\sigma}_V$ .

Projektionen  $N_\alpha$  im Nenner der Wurzel. Die Potentialschwankung im Tomogramm hängt somit nur noch exponentiell von der Dicke ab. Dies bedeutet wiederum, dass das Rauschen im rekonstruierten 3D-Potential immer mit der Dicke zunimmt, und demzufolge keine optimale Dicke, wie beim 2D-Potential, mehr existiert (Gl. 3.20). Das Rauschen hängt dafür jetzt vom Abtastintervall  $d$  im rekonstruierten Volumen ab: Je kleiner  $d$  desto größer  $\sigma_V$ .

**Rauschsimulation** Um den zunächst intuitiv gefundenen Ausdruck 5.18 zu überprüfen, wurden Rauschsimulationen durchgeführt, die im Einzelnen folgende Schritte enthalten:

1. Definition von elf sphärischen zweidimensionalen Testobjekten

$$V(x, z) = \begin{cases} V_0 & \text{falls } \sqrt{x^2 + z^2} \leq t \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}, \quad (5.19)$$

worin  $V_0$  das Potential und  $t$  die Objektdicke bedeuten. Die Objektdicke wird dabei von  $t = 50 \text{ nm}$  bis  $t = 500 \text{ nm}$  in Schritten von  $50 \text{ nm}$  bei einer Abtastung von  $d = 5 \text{ nm}$  pro Pixel variiert.

2. Radon-Transformation der elf Testobjekte zur Berechnung der Sinogramme  $V(\hat{x}, \alpha)$ , bestehend aus  $N_\alpha = 180$  eindimensionalen projizierten Potentialen  $V(x)$  im Kippwinkelbereich von  $\alpha = -90^\circ, -89^\circ, \dots, +89^\circ$ .
3. Berechnung der projizierten Dicke  $t(\hat{x}, \alpha) = V(\hat{x}, \alpha) / V_0$ .
4. Berechnung der Elektronendosis pro holographisch rekonstruiertem Pixel  $N_{rec}(\hat{x}, \alpha) = N_{0,rec} \exp\left(-\frac{t(\hat{x}, \alpha)}{\lambda}\right)$  (Gl. 3.16). Es werden dabei, wie in Abschnitt 3.6, die Werte  $N_{0,rec} = 32000$  und  $\lambda = 200 \text{ nm}$  verwendet.
5. Rauschsimulation der Sinogramme durch Addition von normalverteilten Zufallszahlen mit der Standardabweichung  $C_E \sigma_\varphi$ .  $\sigma_\varphi$  wird durch Gleichung 3.10 mit  $N_{rec}(\hat{x}, \alpha)$  und dem Kontrast  $\mu_A$  berechnet, wobei  $\mu_A$  durch Gl. (??) bei Annahme von  $\mu = 20\%$  gegeben ist. Die Simulation wird pro Testobjekt 225-mal zur Generierung von 225 verrauschten Sinogrammen wiederholt.
6. W-SIRT-Rekonstruktion der 225 verrauschten Sinogramme bei Verwendung des in Abschnitt 5.5.2 vorgestellten exakten Gewichtungsfilters. Dazu wird nur eine Iteration gewählt, da diese Anzahl bzgl. der Konvergenz bei Rauschen das beste Ergebnis geliefert hat (vgl. Abschn. 5.5.3 und Abb. 5.25 unten).
7. Berechnung der Standardabweichung  $\sigma_V$  der zentralen Pixelwerte<sup>23</sup> der 225 Einzelrekonstruktionen.

<sup>23</sup>Nur im zentralen Pixel ist die projizierte Objektdicke der hier angenommenen sphärischen Verteilung in allen Projektionen gleich.

## 5. Holographische Tomographie

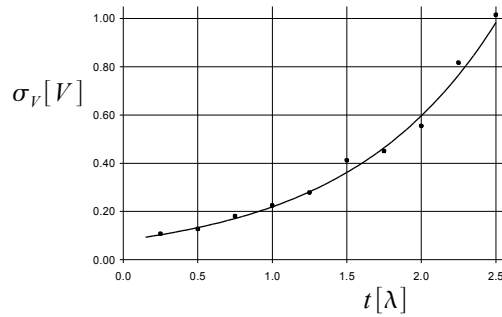


Abbildung 5.32.: Durch Phasenrauschen verursachte Schwankung  $\sigma_V$  in einem Potential-Voxel als Funktion der Objektdicke  $t$  in Einheiten der mittleren freien Weglänge  $\lambda$ . Der durchgezogene Graph entspricht dem analytischen Ausdruck (5.18). Die Punkte entsprechen Werten, die aus Rauschsimulationen erhalten wurden.

### Vergleich Simulation mit analytischen gefundenen Ausdruck

Zur Verifizierung von Gleichung (5.18) wird diese zusammen mit den aus der Simulationsrechnung erhaltenen Werten für  $\sigma_V$  in Abhängigkeit von der Objektdicke in Abbildung 5.32 dargestellt. Die dabei gefundene Übereinstimmung unterstreicht die Gültigkeit der Gleichung (5.18). Hieraus ist ablesbar, dass  $\sigma_V$  bei üblicherweise verwendeten Probendicken von  $t \approx \lambda$  und Auflösungen von  $d = 5 \text{ nm}$  im Bereich von  $0.15 - 0.25V$  liegt.

Die hier gefundene Beschreibung besitzt jedoch auch Einschränkungen: Einflüsse der CCD Kamera, oder die Tatsache, dass die projizierte Dicke normalerweise von der Kipprichtung abhängt (vgl. Punkt 7 der Simulation), wurden nicht berücksichtigt. Diese Einschränkungen begrenzen jedoch nicht die generelle Gültigkeit der Beziehung

$$\sigma_V \propto \frac{1}{d} \sqrt{\frac{1}{N_\alpha}} \quad (5.20)$$

zur Beschreibung des Einflusses der beiden tomographischen Parameter  $N_\alpha$  (Anzahl der Projektionen) und  $d$  (Voxelgröße) auf die Potentialschwankung  $\sigma_V$  in einem Voxel des rekonstruierten 3D-Potentials.

### 5.5.10. Einfluss dynamischer Effekte

In Abschnitt 5.4.4 wurde bereits am Beispiel einer Germanium-Probe (Abschn. 6.3.3) erläutert, wie nach Ausrichtung der Kippserie die Phasenbilder, die stark von dynamischer Beugung betroffen sind, identifiziert und aus der Kippserie entfernt werden. Für die nun folgende Untersuchung des Einflusses der dynamischen Effekte auf das rekonstruierte 3D-Potential werden auch die “dynamischen” Phasenbilder verwendet. Im Einzelnen wurde wie in Abb. 5.33 veranschaulicht vorgegangen:

1. Extraktion eines Sinogramms aus der experimentellen Kippserie<sup>24</sup>.
2. W-SIRT Rekonstruktion des Querschnitts der Probe aus dem Sinogramm.
3. Modellierung des Querschnitts bei Annahme homogener Potentialverteilung von  $V_0 = 14.5V$ .
4. Berechnung des Sinogramms aus dem Modell für gleiche Kippwinkel wie beim experimentellen Sinogramm.
5. Subtraktion von experimentellen und berechneten Sinogramm. Die Differenz wird auf das berechnete Sinogramm addiert, woraus ein "dynamisch-moduliertes" Sinogramm des Modells resultiert. Dabei wird angenommen, dass die im Phasen-Profil gezeigten Abweichungen zwischen Experiment (grün) und Modell (rot) nur durch dynamische Effekte verursacht werden.
6. Vergleich der W-SIRT Rekonstruktionen des Modells mit (links) und ohne dynamische Effekte (rechts). Die beiden daraus resultierenden Potentialverteilungen unterscheiden sich nur marginal. Dies verdeutlichen auch die geringen Abweichungen (im Mittel ca.  $0.05V$ ) im Potential-Profil entlang der waagerechten Linien und die nur leichte Verbreiterung des Peaks im Histogramm bei dynamischen Effekten (ca.  $0.05V$ ).

Es konnte somit in diesem speziellen Fall der Germanium-Nadel demonstriert werden, dass die dynamischen Effekte eine eher untergeordnete Rolle spielen. Deren Einfluss verringert sich sogar noch, wenn wie oben erwähnt, die am stärksten von dynamischer Beugung beeinflussten Phasen für die 3D-Rekonstruktion unberücksichtigt bleiben.

Mit dieser Untersuchung kann jedoch noch nicht geklärt werden, ob die dynamische Streuung auch zu einer globalen Dämpfung der Phasen in allen Kippungen gegenüber der mit der Phase-Grating-Näherung (2.6) berechneten führt. Bei Lubk et al. (2010) wird diesbezüglich ein dynamischer Faktor von  $r_{Dyn} \approx 0.99$  für Germanium vorhergesagt.

### 5.5.11. Zusammenfassung

Für die tomographische Rekonstruktion wurde die W-SIRT entwickelt, eine modifizierte SIRT, die statt einer Einfachen, wie in der konventionellen SIRT, eine Gewichtete Rückprojektion in jeder Iteration verwendet. Beim Vergleich am Beispiel des Shepp-Logan-Phantoms zeigt die W-SIRT ein fast fünfmal besseres Konvergenzverhalten als die SIRT (Diskrepanz zwischen Original- und rekonstruierter Verteilung ist bei der W-SIRT um ein Fünftel kleiner als bei der SIRT). Zudem liefert die W-SIRT auch bei Missing Wedge genauere Ergebnisse.

---

<sup>24</sup>Die Kippserie wurde zuvor auf die in Abschn. 5.5.8 beschriebene Weise auf den Winkelbereich  $\pm 90^\circ$  erweitert.

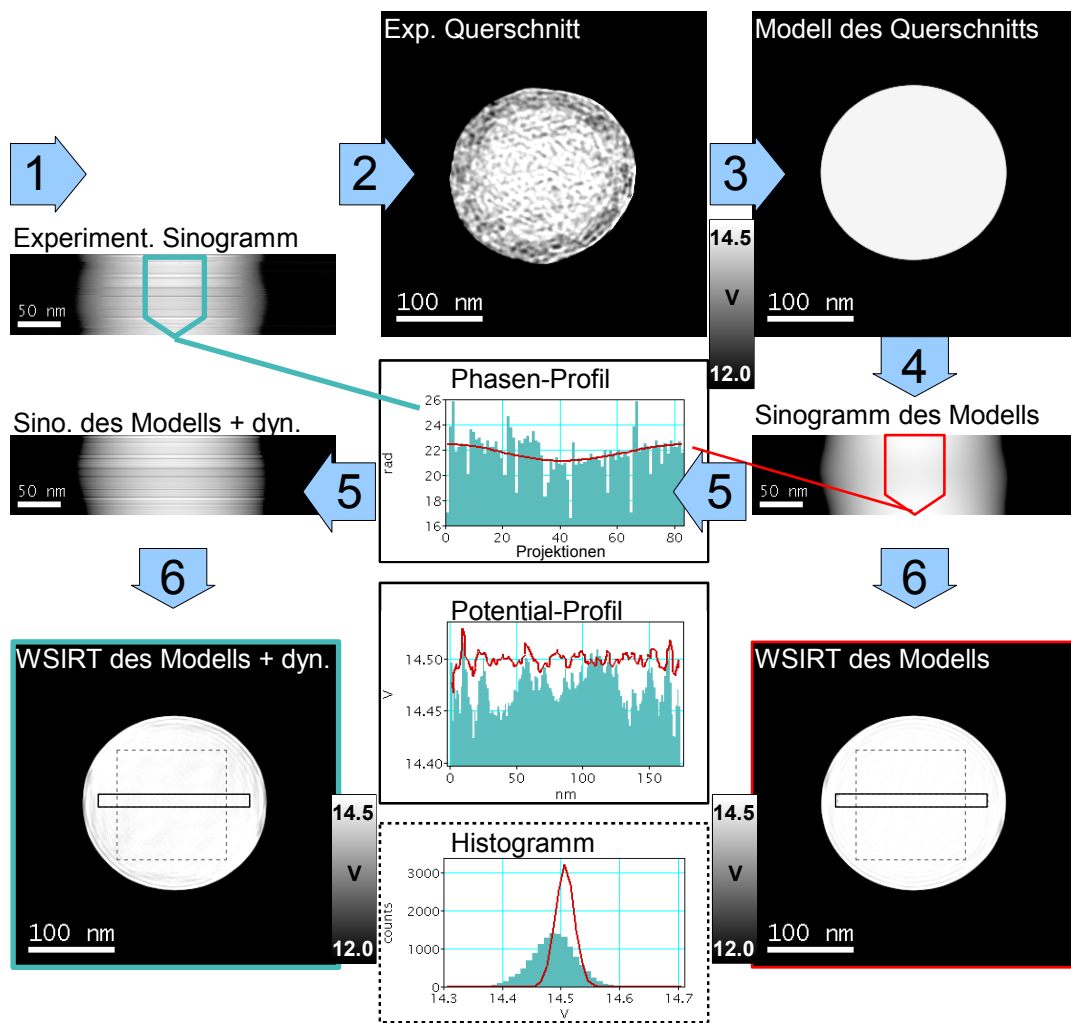


Abbildung 5.33.: Untersuchung des Einflusses dynamischer Streuung auf die tomographische Rekonstruktion einer Germanium-Nadel. Die dabei durchgeführten einzelnen Schritte sind in den Punkten 1-6 im Text erklärt.



Dies wird an einem kreisförmigen Objekt mit einer in  $z$ -Richtung verlaufenden sinoidalen Modulation demonstriert: Die sinoidale Modulation im Testobjekt lässt sich mittels W-SIRT fast fehlerfrei aus einem Kippwinkelbereich von  $\pm 80^\circ$  wieder rekonstruieren, was mittels konventioneller SIRT nicht gelingt. Dennoch enthält auch ein mit W-SIRT rekonstruiertes Tomogramm bei Missing Wedge Artefakte, die außerdem, wie in diesem Abschnitt aufgezeigt, von Form, Größe und Position des zu rekonstruierenden Objektes abhängen. Das Problem des Missing Wedge lässt sich bei geeigneter Objektsymmetrie vermeiden, indem man vorhandene Projektionen entsprechend der Symmetrie im fehlenden Winkelbereich für die tomographische Rekonstruktion nochmals verwendet. Diese Idee konnte auch auf experimentelle Daten erfolgreich angewandt werden, wie das nächste Kapitel zeigt. Des Weiteren wurde ein Ausdruck für die Potentialschwankung in einem Voxel des Tomogramms in Abhängigkeit von den experimentellen Parametern (Dosis, Streifenkontrast, Anzahl der Projektionen, Objektdicke) bei der Aufzeichnung der holographischen Kippserie gefunden und durch umfassende Rauschsimulationen verifiziert. Schließlich wurde für den speziellen Fall einer Germanium-Probe demonstriert, dass hierbei die dynamischen Effekte nur geringfügig die Präzision (ca.  $0.05 V$ ) im rekonstruierten 3D-Potential reduzieren.

## 5. *Holographische Tomographie*

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

Die im vorhergehenden Kapitel beschriebene Entwicklung der Holographischen Tomographie mit deren (teil-)automatisierten Methoden bietet die Grundlage dafür, die elektrostatischen Potentiale einer Reihe von Nanostrukturen in 3D zu rekonstruieren und zu analysieren. Dazu gehören vor allem mittels FIB-Geräten präparierte Nadeln und epitaktisch gewachsene Nanodrähte aus den Halbleitermaterialien Silizium, Germanium, Galium-Arsenid, Aluminium-Galium-Arsenid, welche entweder dotiert oder undotiert vorliegen.

Die erste hier präsentierte 3D-Rekonstruktion einer mit Gold beschatteten Polystyren-Latexkugel unterstreicht, dass mittels EHT rekonstruierte 3D-Daten tatsächlich dem elektrostatischen Potential entsprechen (Abschn. 6.2). Insbesondere die einfache Geometrie, die homogene und amorphe Struktur und das schwache Streupotential machen die Latexkugel zu einem geeigneten Testobjekt. Ferner wird aufgezeigt, dass die EHT eine einzigartige Möglichkeit für die Analyse von dotierten Halbleiter-Nanostrukturen bietet: Im Innern der rekonstruierten 3D-Potentiale lässt sich der Verlauf der Diffusionsspannung an *pn*-Übergängen (Silizium, Germanium) ohne störende Projektionseffekte von bspw. amorphen Randschichten abbilden und messen (Abschn. 6.3). Zum Schluss wird am Beispiel von Nanodrähten aus GaAs und AlGaAs die Leistungsfähigkeit der EHT für 3D-Untersuchungen bzgl. der äußeren Gestalt (Morphologie) und der inneren Struktur (Kern-Schale-Strukturen) demonstriert (6.4).

Darüberhinaus wurden ferro- und piezo-elektrische Nanopartikel ( $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ) [Wolf (2007); Wolf et al. (2008)], und ferro-magnetische Magnetitkristalle ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) in magnetotaktischen Bakterien [Wolf et al. (2007)] anhand der mittels EHT rekonstruierten Tomogramme in 3D analysiert. Diese bleiben aber in dieser Arbeit unberücksichtigt.

### 6.1. Experimentelle Details

Für die in diesem Kapitel analysierten 3D-Potentiale von acht verschiedenen Proben sind hier zunächst die wichtigsten experimentellen Details zur

- Aufzeichnung der Kippserie von Hologrammen,
- Rekonstruktion der Phasen-Kippserie,
- Ausrichtung der Phasen-Kippserie und

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

- Tomographischen Rekonstruktion

zusammengefasst. Im Einzelnen wurden die folgenden Proben untersucht:

- eine mit Gold beschattete Polystyren-Latexkugel auf Kohlefolie,
- drei mittels Fokussierten Ionen Strahl (FIB) präparierte nadelförmige Proben, davon eine aus Silizium mit p-dotiertem Gebiet auf n-dotiertem Substrat (*p-Si-Nadel*), eine aus Silizium mit n-dotiertem Gebiet auf p-dotiertem Substrat (*n-Si-Nadel*) und eine aus Germanium mit n-dotiertem Gebiet auf p-dotiertem Substrat (*n-Ge-Nadel*),
- vier epitaktisch gewachsene Nanodrähte, zwei aus GaAs (*GaAs-Draht I,II*), ein Nanodraht mit GaAs/AlGaAs Kern/Schale Struktur (*GaAs/AlGaAs-Draht*) und ein Nanodraht aus AlGaAs (*AlGaAs-Draht*).

### Aufzeichnung

Alle holographischen Kippserien wurden an einem Philips CM200FEG ST/LL TEM im Lorentzmodus mithilfe der in dieser Arbeit entwickelten THOMAS-Software aufgezeichnet (Abschn.5.2.6). Tabelle 6.1 bietet einen Überblick über Winkelbereich und Dauer (Zeit zwischen erstem und letztem Objekthologramm) der einzelnen Kippserien.

Probe	Winkelbereich in °	Winkelschrittweite	Dauer (hh:mm)
Latexkugel	[−70, +60]	2°	01:38
p-Si-Nadel	[−70, +70]	2°	04:00
n-Si-Nadel	[−79, +75]	2°	ca. 03:30
n-Ge-Nadel	[−73, +73]	2°	02:00
GaAs-Draht I	[−74, +68]	2°	02:41
GaAs/AlGaAs-Draht	[−72, +64]	2°	01:23
GaAs-Draht II	[−68, +68]	2°	02:42
AlGaAs-Draht	[−67, +65]	2°, 3°	02:35

Tabelle 6.1.: Winkelbereich, Winkelschrittweite und Dauer der aufgezeichneten holographischen Kippserien.

### Holographische Rekonstruktion

Vor der holographischen Rekonstruktion wurden an allen Objekt- und Leerhologrammen die fehlerhaften Kamerapixel und die Fresnelstreifen auf die in Abschn. 5.3.1 beschriebene Weise beseitigt.

Die für Kippserien automatisierte holographische Rekonstruktion der Hologramme (Abschn. 3.3) liefert die Bildwellen in Amplitude und Phase. Entscheidend für die

Auflösung der rekonstruierten Bildwelle sind dabei die in Tabelle 6.2 aufgelisteten drei Parameter Form, Typ und Größe der numerischen Maske zur Separation des Seitenbandes.

Probe	Seitenband-Maske		
	Form	Typ	Größe
Latexkugel	rund	Butterworth 10. Ordnung	$(6.1\text{ nm})^{-1}$
p-Si-Nadel	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(10.2\text{ nm})^{-1}$
n-Si-Nadel	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(6.5\text{ nm})^{-1}$
n-Ge-Nadel	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(6.6\text{ nm})^{-1}$
GaAs-Draht I	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(7.6\text{ nm})^{-1}$
GaAs/AlGaAs-Draht	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(8.0\text{ nm})^{-1}$
GaAs-Draht II	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(6.2\text{ nm})^{-1}$
AlGaAs-Draht	quadratisch	FT des Hanning-Windows	$(7.5\text{ nm})^{-1}$

Tabelle 6.2.: Form, Typ und Größe der numerischen Maske zur Separation des Seitenbandes bei der holographischen Rekonstruktion der Bildwellen. Bei runden Masken entspricht die Größe dem Radius, während bei quadratischen Masken die Größe gleich der halben Kantenlänge ist.

Das Unwrapping der Phasen-Kippserie erfolgte zunächst automatisch, mittels der Hybrid-Methode [Perkes (2002)], einer Kombination der beiden Algorithmen von Flynn (Abschn. 3.7.3) und Goldstein (Abschn. 3.7.2). Mitunter mussten danach notwendige Korrekturen an den Phasenbildern mithilfe der selbstentwickelten, halbautomatischen Prozeduren (Abschn. 5.3.4) durchgeführt werden. Schließlich wurde bei allen Phasenbildern der Phasen-Offset so verschoben, dass ein definierter Bereich im Vakuum den Mittelwert Null besitzt (Abschn. 5.3.3).

## Ausrichtung

Die bei den acht Proben benutzten Methoden zur Ausrichtung der Phasen-Kippserien sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst. Bei der Latexkugel eignen sich die auf der Probe liegenden kleinen Goldpartikel als Bezugspunkte für das in Abschnitt 4.5.2 eingeführte *Fiducial-marker alignment*.

Bei allen anderen Proben wurde die Verschiebungen zwischen den einzelnen Projektionen zunächst gröber, anhand von Bezugslinien (Abschn. 5.4.1), und dann feiner, mittels der  $\hat{x}, \alpha$ - bzw.  $y, \alpha$ -Schnittebenen (Abschn. 5.4.2), korrigiert. Danach wurde die Lage der Kippachse in der Kippserie mit der in Abschn. 5.4.3 vorgestellten Methode bestimmt.

Bei den kristallinen Halbleiter-Proben reduziert sich wegen dynamischer Effekte in einigen Phasenbildern die Anzahl der für die tomographische Rekonstruktion zur Verfügung stehenden Phasenbilder  $N_{\alpha}^{rek}$ ; bei den nadelförmigen FIB-Proben kann  $N_{\alpha}^{rek}$  durch Ausnutzung der Objektsymmetrie (Abschn. 5.5.8) wieder erhöht werden.

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

Probe	Ausrichtungsmethode	$N_{\alpha}^{roh}$	$N_{\alpha}^{rek}$
Latexkugel	Fiducial-marker alignment in IMOD <sup>1</sup>	66	66
p-Si-Nadel	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	71	64+17
n-Si-Nadel	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	78	72+7
n-Ge-Nadel	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	74	59+11
GaAs-Draht I	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	72	67
GaAs/AlGaAs-Draht	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	69	51
GaAs-Draht II	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	69	51
AlGaAs-Draht	lt. Abschn. 5.4.1 und 5.4.2	59	56

Tabelle 6.3.: Ausrichtungsmethode der Phasen-Kippserie, ursprüngliche Anzahl von Projektionen  $N_{\alpha}^{roh}$  und die für die 3D-Rekonstruktion zur Verfügung stehende Anzahl von Projektionen  $N_{\alpha}^{rek}$ . Bei den kristallinen Halbleiter-Proben (2-8) reduziert sich  $N_{\alpha}^{rek}$  wegen dynamischer Effekte in den Phasenbildern; bei den nadelförmigen FIB-Proben (2-4) kann  $N_{\alpha}^{rek}$  durch Ausnutzung der Objektsymmetrie wieder erhöht werden (2. Summand in Spalte  $N_{\alpha}^{rek}$ ).

Probe	Anzahl Iterationen	Korrekturfaktor $a^{-1}$
Latexkugel	5	1.19
p-Si-Nadel	2	1.00
n-Si-Nadel	4	1.00
n-Ge-Nadel	4	1.00
GaAs-Draht I	1	1.12
GaAs/AlGaAs-Draht	1	1.17
GaAs-Draht II	28	1.03
AlGaAs-Draht	8	1.08

Tabelle 6.4.: Anzahl der Iterationen bei der W-SIRT und Korrekturfaktor für die Rekonstruktion des 3D-Potentials.

### Tomographische Rekonstruktion

Die 3D-Potentiale aller acht Proben wurden mit der in dieser Arbeit entwickelten W-SIRT (Abschn. 5.5) bei Benutzung eines *exakten* Gewichtungsfilters (Abschn. 5.5.2) rekonstruiert.

In Tabelle 6.4 sind die Anzahl der Iterationen der W-SIRT und der Korrekturfaktor für alle Proben aufgelistet. Die Anzahl der in der W-SIRT zu benutzenden Iterationen richtet sich dabei nach dem Konvergenzverhalten. Um eine möglichst (optimale) Anzahl an Iterationen anhand der in Abschnitt 5.5.6 vorgestellten Methode zu finden, erfordert dies zunächst ein 2D-Testobjekt. Zudem muss das Testobjekt dem Querschnitt des bspw. zu rekonstruierenden Nanodrahtes möglichst ähnlich sein, und der gleiche Kippbereich wie im Experiment benutzt werden.

Außer bei den nadelförmigen Proben (2-4) steht für die tomographische Rekonstruktion nur ein begrenzter Kippbereich zur Verfügung. Dadurch können infolge des Missing Wedge die mittels W-SIRT rekonstruierten 3D-Potentiale zu geringe Werte besitzen. Für die lineare Korrektur der 3D-Potentialwerte wurden diese entsprechend der in Abschnitt 5.5.7 geschilderten Methode mit den in der Tabelle 6.4 angegebenen Korrekturfaktoren multipliziert.

## 6.2. Latexkugel

Schon in der Pionierarbeit zur Holographischen Tomographie wurden Polystyren-Latexkugeln benutzt, um deren dreidimensionale Phasenverteilung zu rekonstruieren [Lai et al. (1994b)]. In der Tat eignen sich Latexkugeln aufgrund ihrer einfachen Geometrie, ihrer homogenen und amorphen Struktur und ihres schwachen Streupotentials sehr gut als Testobjekte für die EHT. Die für die Tomographie unverzichtbare Proportionalität zwischen aufgezeichneten Signal (Phase) und der projizierten Objekteigenschaft (Potential) gilt insbesondere bei der Latexkugel in sehr guter Näherung, weil sie nicht durch dynamische Wechselwirkung zwischen Elektronenwelle und Objekt beeinträchtigt wird. Das unterstreicht das in Abb. 6.1(B) gezeigte Sinogramm einerseits, und die Tatsache andererseits, dass alle 66 Projektionen für die tomographische Rekonstruktion benutzt werden können. Das Experiment der oben genannten Pionierarbeit wurde hier an einer heutzutage üblichen TEM-Standardprobe wiederholt. Diese enthält mit Gold beschattete Polystyren-Latexkugeln von ca.  $200\text{ nm}$  Durchmesser, die auf einer Kohlelochfolie liegen, welche wiederum ein Kupfernetzchen bedeckt.

Die wichtigsten Eckdaten zur holographischen Aufnahme und Rekonstruktion der Kippserie finden sich in Abschn. 6.1. Da die Ausdehnung der Kohlefolie das Gesichtsfeld bei weitem übersteigt, gelangen mit steigendem Betrag des Kippwinkels  $|\alpha|$  immer neue Bereiche der Kohlefolie mit daraufliegenden Goldpartikeln, in das Gesichtsfeld. Zur Beseitigung dieser störenden Bereiche werden alle Projektionen jeweils mit einer entsprechenden numerischen Maske multipliziert, die nach einer Breite von  $w_{fov} \cdot \cos(\alpha)$  ( $w_{fov}$  Breite des Gesichtsfeldes) in senkrechter Richtung zur Kippachse die Projektionen zu Null dämpft.

Das rekonstruierte 3D-Potential (Details zur Rekonstruktion s. Tab. 6.4 Z. 1) ist in Abb. 6.1 als Volumen-Textur dargestellt. Entsprechend der Farbkodierung sind darin die Latexkugel blau ( $V_0^{Latex} \approx 8V$ ) und die Goldteilchen rot ( $V_0^{Gold} > 14V$ ). Letztere befinden sich seitlich auf der Latexkugel und auf der Kohlefolie. Des Weiteren zeigt die  $(x, z)$ -Schnittebene (D) durch die Latexkugel deren homogene Potentialverteilung im Inneren und die Goldteilchen als weisse Punkte am Rand. Diesen Befund unterstreichen auch die Linienprofile (F) in horizontaler (grün) und vertikaler Richtung (rot) entlang der Pfeile in (D). Im vertikalen Profil ist der Potentialsprung rechts durch eines der Goldteilchen verursacht, welches auf der Oberfläche der Latexkugel sitzt. Zudem zeigt das Linienprofil, dass das Potential außerhalb der Kugel im Vakuum deutlich kleiner Null wird (ca.  $-2V$ ). Dies ist nicht die Folge von Streufeldern, sondern ist auf die PSF bei Missing Wedge (Abb.

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

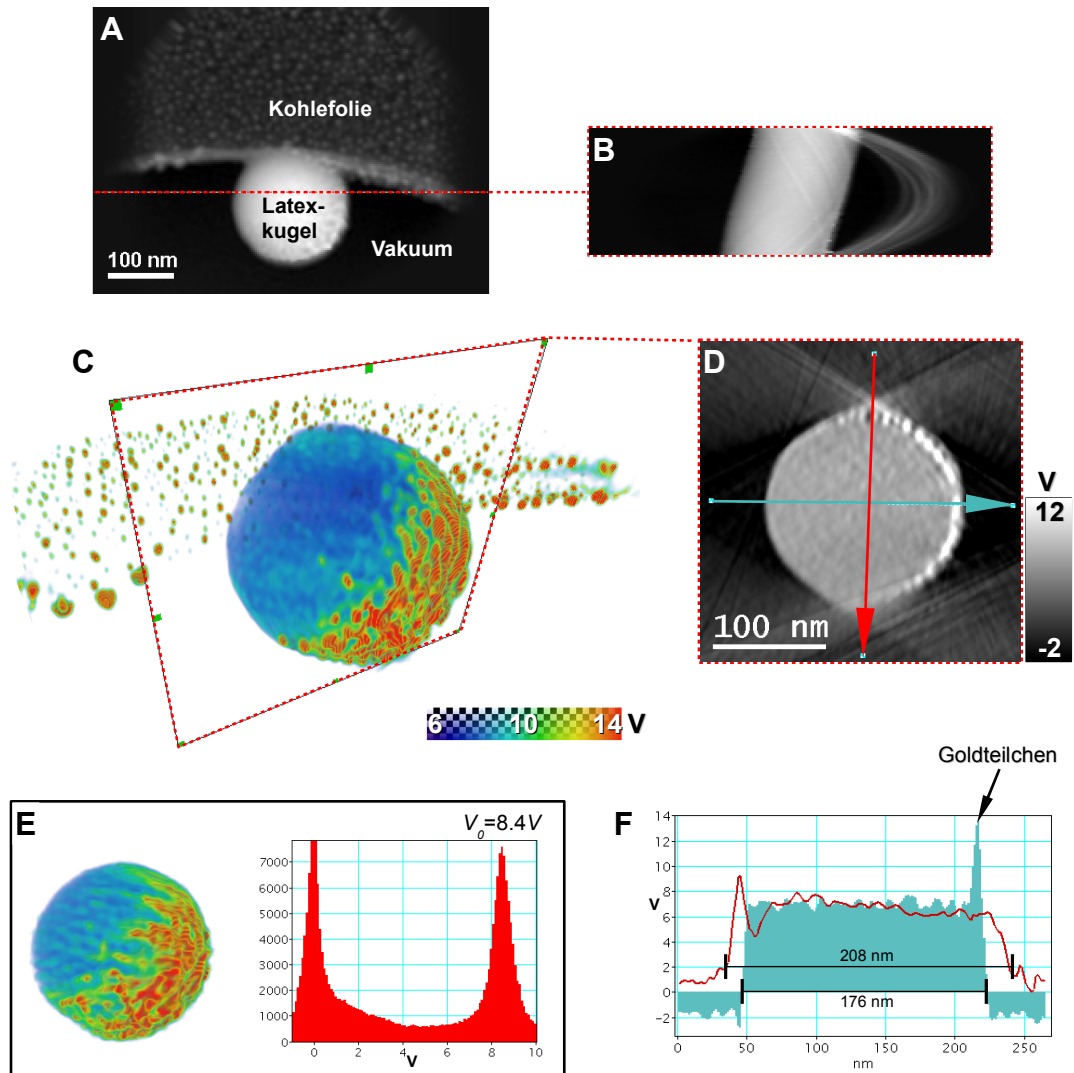


Abbildung 6.1.: Holographische Tomographie einer mit Gold beschatteten Latexkugel.

**A:** Phasenbild bei  $-6^\circ$  Kippung: Die kleinen Goldteilchen sind aufgrund ihrer starken Phasenschiebung als helle Punkte auf Latexkugel und Kohlefolie zu sehen.

**B:** Phasen-Sinogramm entlang der rot gestrichelten Linie in (A).

**C:** Volumen-Rendering des 3D-Potentials: Darin sind die Latexkugel blau ( $\approx 8\text{ V}$ ), und die Goldteilchen rot ( $> 14\text{ V}$ ).

**D:**  $x, z$ -Schnittebene durch die Latexkugel deformiert durch Missing Wedge.

**E:** Rekonstruiertes 3D-Potential bei Ausnutzung der Kugelsymmetrie zum Auffüllen des Missing Wedge und zugehöriges Histogramm. Die beiden Peaks im Histogramm zeigen das Potential im Vakuum ( $0\text{ V}$ ) und das MIP ( $8.4\text{ V}$ ).

**F:** Linienprofil in horizontaler (grün) und vertikaler Richtung (rot) entsprechend der Pfeile in (D).



4.19) zurückzuführen, welche in horizontaler Richtung negativ ist. Im vertikalen Linienprofil ist zudem das zweite charakteristische Merkmal der PSF bei Missing Wedge ersichtlich: die Elongation. Aus den in (F) stehenden Werten resultiert ein Elongationsfaktor von  $e_{xz} = 208 \text{ nm} / 176 \text{ nm} = 1.18$ . Dieser Wert ist im Vergleich zu Radermachers Faktor (Gl. 4.20)  $e_{xz}(\alpha_0 = 65^\circ) = 1.42$  deutlich kleiner. Dies ist u.a. auf die Verbesserungen der W-SIRT gegenüber den konventionellen Techniken W-BP und SIRT zurückzuführen (Abschn. 5.5).

Leider ist wegen des Missing Wedge auch die Genauigkeit der rekonstruierten Potentialwerte eingeschränkt, was insbesondere die exakte Bestimmung des Mittleren Inneren Potentials  $V_0$  (MIP) behindert (Abschn. 5.5.7). Deshalb wurde eine weitere W-SIRT-Rekonstruktion durchgeführt, nachdem die Rotationssymmetrie der Latexkugel ausgenutzt wurde, um die Kippserie auf  $\pm 90^\circ$  zu erweitern (Abschn. 5.5.8). Dafür musste die Ausrichtung der Kippserie so vorgenommen werden, dass Symmetrieachse und Kippachse übereinstimmen.

Abbildung 6.1 E zeigt das Ergebnis der zweiten Rekonstruktion ohne Missing Wedge. Diese hat zwar den Nachteil, dass die Goldteilchen auf der Oberfläche nicht mehr sauber rekonstruiert werden, weil sie nicht der Symmetrie der Latexkugel entsprechen. Dafür besitzt die Latexkugel keine Elongation mehr. Außerdem zeigt das Histogramm einen definierten Peak bei  $8.4 \text{ V}$ . Durch die Identifikation des Peaks als MIP  $V_0$  und der Halbwertsbreite des Peaks als Fehler  $\Delta V_0$  lässt sich schließlich  $V_0 = (8.4 \pm 0.5) \text{ V}$  angeben<sup>2</sup>. Dies stimmt sehr gut mit dem von Wang und Mitarbeitern ermittelten Wert von  $(8.5 \pm 0.7) \text{ V}$  überein. In Wang et al. (1998) wurde neben Radius und 2D-Position das MIP als Parameter eines rekursiven vier-parametrischen Minimum- $\chi$ -Quadrat-Fits aus holographisch rekonstruierten Phasenbildern von Latexkugeln bestimmt.

## 6.3. Dotierte Halbleiter

Im heutigen Technologie-Zeitalter ist es beinahe überflüssig, auf die enorme Wichtigkeit von Halbleitermaterialien als Grundmaterial neuer Bauelemente (Transistoren) hinzuweisen. Die Funktionalität dieser immer kleiner werdenden Bauelemente<sup>3</sup> basiert auf den physikalischen Prozessen, die an einem sogenannten *pn*-Übergang vorherrschen. Ein *pn*-Übergang bildet sich an der Grenze zwischen einem *p*- und einem *n*-dotierten Gebiet aus. Die *p*-Dotierung wird realisiert, indem dreiwertige Fremdatome (z.B. Bor), sogenannte Akzeptoren, in das vierwertige Substrat (z.B. Silizium) eingebracht werden. Dagegen werden zur *n*-Dotierung fünfwertige Fremdatome (z.B. Phosphor), sogenannte Donatoren, eingebracht. Akzeptoren und Donatoren verändern die Anzahl der freien Ladungsträger im *p*- und *n*-Gebiet. Durch Diffusion gelangen einerseits negative freie Ladungsträger (Elektronen) aus dem *n*- in das *p*-Gebiet, andererseits positive freie Ladungsträger (Löcher) aus dem *p*- in das *n*-Gebiet. Dadurch bildet sich ein elektrisches Feld und

<sup>2</sup>Beim 3D-Potential mit Missing Wedge wurde  $V_0 = (8.1 \pm 0.7) \text{ V}$  nach linearer Korrektur des W-SIRT Ergebnisses erhalten (s. dazu Abschn. 5.5.7 und Tab. 6.4 Zeile 1) .

<sup>3</sup>Zur Zeit beträgt die Transistor-Gate-Länge rund  $30 \text{ nm}$ .

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

damit eine Potentialdifferenz, die sogenannte Diffusionsspannung (*built-in voltage*), am  $pn$ -Übergang aus.

Eine mathematische Beschreibung dieser physikalischen Prozesse liefert das Drift-Diffusions-Modell, eine Kombination von Diffusions- und Poisson-Gleichung

$$\Delta V_{pn}(\mathbf{r}) = -\frac{e}{\epsilon_r \epsilon_0} (N_D(\mathbf{r}) - N_A(\mathbf{r}) - n_C(\mathbf{r}) + p_V(\mathbf{r})). \quad (6.1)$$

Darin bedeuten  $\Delta$  der Laplace-Operator,  $V_{pn}(\mathbf{r})$  die Diffusionsspannung,  $e$  die Elementarladung,  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante,  $\epsilon_r$  die Dielektrizitätszahl,  $N_A(\mathbf{r})$  und  $N_D(\mathbf{r})$  die Dotierstoff-Konzentrationen jeweils von Akzeptoren und Donatoren, sowie  $n_C(\mathbf{r})$  und  $p_V(\mathbf{r})$  die Konzentration der freien Ladungsträger jeweils im Leitungsband (Elektronen) und Valenzband (Löcher). Die Diffusionsspannung kann maximal die Spannung  $E_{gap}/e$  erreichen, wobei  $E_{gap}$  die Bandlücke des Halbleitermaterials ist.

1999 gelang es Rau und Mitarbeitern erstmals, die  $pn$ -Übergänge in einem Feldeffekt-Transistor (FET) aus Silizium und damit dessen Dotiergebiete mittels EH sichtbar zu machen [Rau et al. (1999, 2000)]. Dabei nutzten die Autoren aus, dass der zusätzliche Beitrag  $V_{pn}(\mathbf{r})$  im 3D-Objektpotential

$$V(\mathbf{r}) = V_0(\mathbf{r}) + V_{pn}(\mathbf{r}) \quad (6.2)$$

eine entsprechende Modulation in der zweidimensionalen Phase  $\varphi(\hat{\mathbf{r}})$  verursacht. Dieser Ansatz wurde in einer Vielzahl von weiteren Arbeiten zur Bestimmung von zweidimensionalen Dotierstoff-Verteilungen (*2D dopand profiling*) in Halbleiterbauelementen ausgenutzt (z.B. McCartney et al. (2002); Twitchett et al. (2005); Lenk et al. (2005); Formanek (2006)).

Alle diese Arbeiten basieren auf dem Zusammenhang

$$\varphi(\hat{\mathbf{r}}) = C_E \cdot [V_0 t(\hat{\mathbf{r}}) - V_{pn}(\hat{\mathbf{r}}) (t(\hat{\mathbf{r}}) - t_0)], \quad (6.3)$$

worin  $t(\hat{\mathbf{r}})$  die Dickenverteilung und  $t_0$  die Dicke einer bzgl. des  $pn$ -Übergangs elektrisch inaktiven Randschicht (*dead layer*) beschreibt. Dabei stellt sich immer das Problem, wie genau man  $t(\hat{\mathbf{r}})$ , bspw. mittels der in Abschnitt 3.6 genannten Methoden, und  $t_0$  [Lenk (2008)] bestimmen kann. Selbst wenn man diese Information besitzt, kann man trotzdem nur ein in  $z$ -Richtung gemitteltes Diffusionspotential mithilfe der Gleichung 6.3 ermitteln.

Erst die Anwendung der Holographischen Tomographie bietet den Zugang zum dreidimensionalen Diffusionspotential. Twitchett-Harrison et al. (2008b) konnten dies erstmals an einem Halbleiterbauelement aus Silizium mit  $pn$ -Übergang demonstrieren.

Auch die im folgenden präsentierten Ergebnisse zeigen diesbezüglich die Leistungsfähigkeit der EHT auf: Die rekonstruierten 3D-Potentiale von FIB präparierten Nadeln (Abschn. 6.3.1) aus dotiertem Silizium und Germanium (Abschn. 6.3.2 und 6.3.3) bieten direkten Zugang zu MIP und Diffusionspotential.

### 6.3.1. Nadel-Präparation mittels FIB

Die Benutzung eines Fokussierten Ionenstrahls (*Focused Ion Beam*) in sogenannten FIB-Geräten hat sich als sehr geeignete Methode zur TEM-Probenpräparation etabliert [Phaneuf (1999); Orloff et al. (2003)]. Spezielle Geräte mit integriertem Raster-Elektronenmikroskop (SEM), wie z.B. die DualBeam<sup>TM</sup> (FIB/SEM) der FEI Company (Eindhoven, Niederlande), bieten die Möglichkeit, den Präparationsprozess permanent zu überwachen. Mittels FIB lassen sich nicht nur (ca.  $100\text{ nm}$ - $1\text{ }\mu\text{m}$ ) dünne Lamellen aus dem Bulkmaterial erzeugen, sondern die Lamellen können seitlich, senkrecht zur ursprünglichen Richtung, weiter beschnitten werden. Auf diese Weise bleibt eine freistehende, bis zu einigen  $\mu\text{m}$  lange “Nadel” mit rechteckigem oder kreisförmigem Querschnitt übrig [Lenk et al. (2005); Lenk (2008)]. Solch eine Geometrie ist hervorragend für tomographische Aufnahmen [Kawase et al. (2007)] geeignet, da sich die projizierte Dicke auch bei hohen Kippwinkeln nur wenig ändert<sup>4</sup>.

### 6.3.2. Dotierte Silizium-Nadeln

Für die 3D-Abbildung von *pn*-Übergängen in Silizium wurden zwei Nadeln untersucht, die aus verschiedenen Wafern auf die mittels FIB präpariert sind. Die verschieden dotierten Schichten wurden mittels Chemical Vapor Deposition (CVD) epitaktisch auf einen vordotierten Rohwafer abgeschieden.

Wie Abbildung 6.2 zeigt, besteht die erste Silizium-Nadel (p-Si-Nadel) aus *n*-dotiertem Substrat (Phosphor  $\bar{N}_D \approx 5 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ ) und einer darauffolgenden, etwa  $200\text{ nm}$  breiten, *p*-dotierten Schicht (Bor  $\bar{N}_A \approx 1 \cdot 10^{19}\text{ cm}^{-3}$ ). Die zweite Nadel (n-Si-Nadel) besteht aus *p*-dotiertem Substrat (Bor  $\bar{N}_A \approx 6 \cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$ ) und einer  $200\text{ nm}$  unter der Oberfläche liegenden, ca.  $100\text{ nm}$  breiten, *n*-dotierten Schicht (Phosphor  $\bar{N}_D \approx 3 \cdot 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ ).

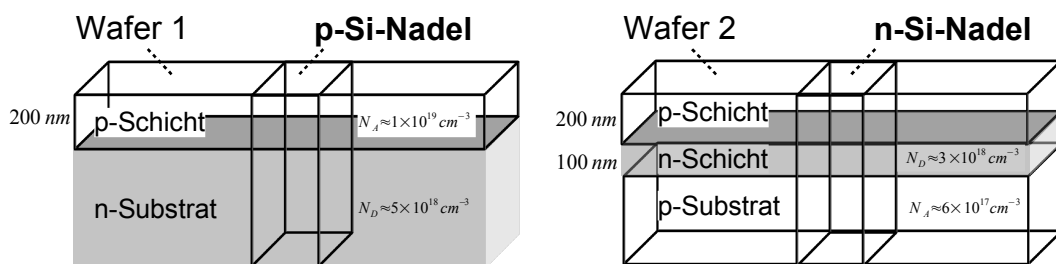


Abbildung 6.2.: Dotierungsstruktur der FIB-präparierten der Silizium-Nadeln. Diese werden hier jeweils nach der höher dotierten Schicht benannt.

Die wichtigsten Daten zur Aufnahme der Kippserien, sowie zur holographischen und tomographischen Rekonstruktion sind in Abschn. 6.1 erläutert und tabelliert. Eine Besonderheit ist hier die Ausnutzung der vierzähligen Symmetrie zur Erweiterung des Kippbereichs, wie in Abschnitt 5.5.8 bereits beschrieben.

<sup>4</sup>Bei planaren Proben ist die projizierte Dicke bei  $70^\circ$  schon fast dreimal so hoch wie bei  $0^\circ$ .

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

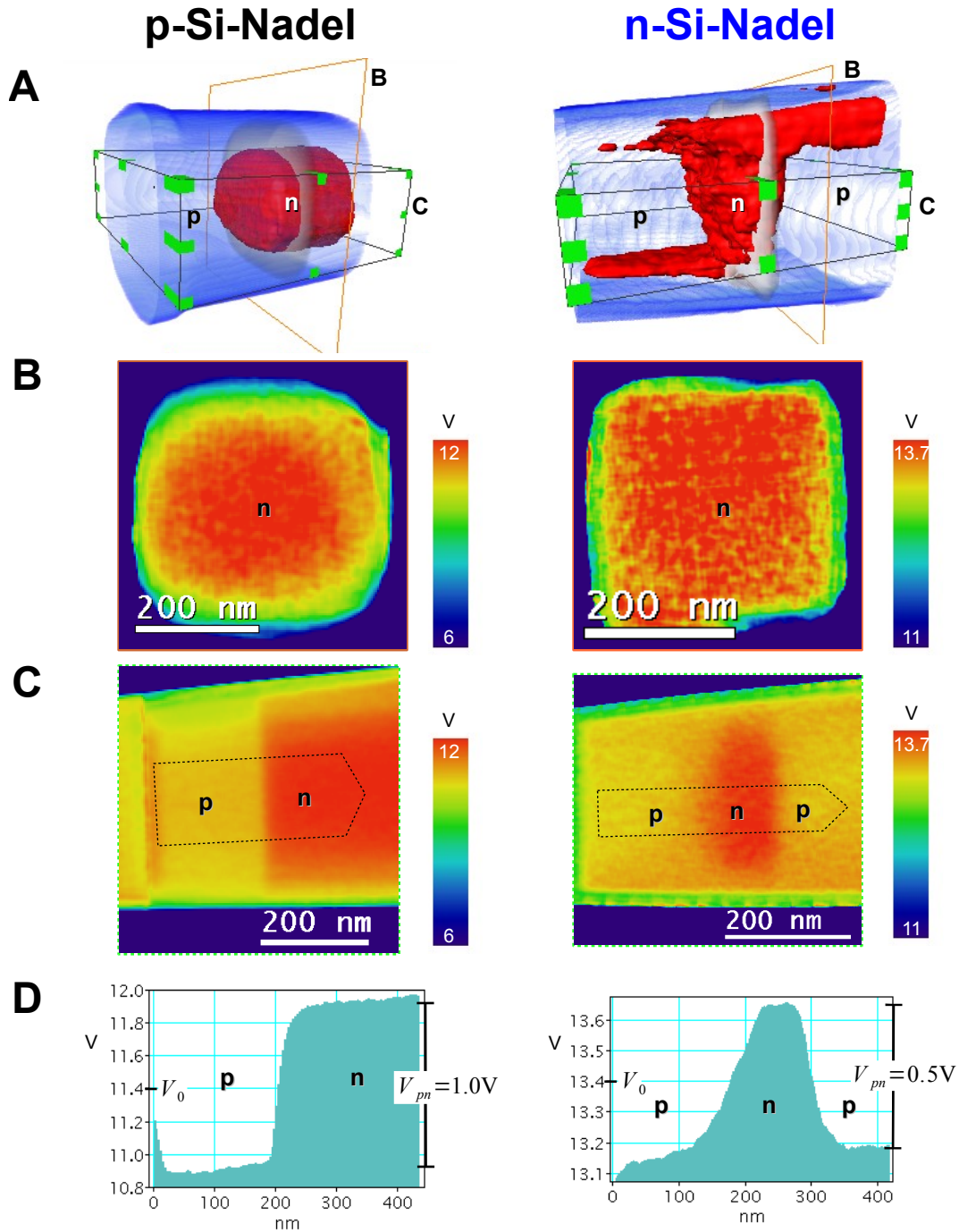


Abbildung 6.3.: Rekonstruiertes 3D-Potential von p-Si-Nadel bzw. n-Si-Nadel.

**A:** 3D-Rendering (blau) und Isopotentialfläche (rot) von 11.30 V bzw. 13.45 V, welche das n-Gebiet umrandet.

**B:** Querschnitt durch das n-Gebiet an der in (A) gezeigten Position.

**C:** Längsschnitt über eine Dicke von 185 nm bzw. 120 nm gemittelt. Die Bereiche für die z-Mittelung sind jeweils in A markiert.

**D:** Linienprofil entlang des Pfeils in (C) über eine Breite von 170 nm bzw. 77 nm gemittelt.

Die Daten sind mittels NAD (Abschn. 4.7) leicht geglättet.

Die rekonstruierten 3D-Potentiale der beiden Nadeln sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Das 3D-Rendering (A) zeigt neben der dreidimensionalen Quaderform der Nadeln auch das in rot dargestellte  $n$ -Gebiet, welches sich über eine entsprechende Isopotentialfläche vom  $p$ -Gebiet klar trennen lässt. Dabei besitzt das  $n$ -dotierte Gebiet ein höheres Potential, weil sich dort infolge der Diffusion der Löcher aus dem  $p$ -Gebiet eine positive Raumladungszone eingestellt hat.

Jedoch ist im 3D-Rendering der  $n$ -Si-Nadel eine Ausschmierung der Isopotentialfläche oben und unten zu erkennen. Dies bedeutet, dass in diesem Bereich das Potential in der  $p$ -Schicht so hoch ist wie in der  $n$ -Schicht. Dieses Problem wird weiter unten nochmals aufgegriffen und diskutiert. Der Vergleich der beiden Quer- und Längsschnitte (B,C) offenbart, dass das Potential in der  $p$ -Si-Nadel, unabhängig von der Dotierung, zum Rand hin schneller abfällt als das der  $n$ -Si-Nadel. Warum beide Nadeln derartig verschiedene Oberflächeneigenschaften besitzen, kann leider derzeit noch nicht erklärt werden.

Dennoch sind in den beiden Längsschnitten (C) die Potentialsprünge an den  $pn$ -Übergängen klar zu erkennen. Diese entsprechen den Diffusionsspannungen, deren Verlauf in Abschnitt 6.3.4 noch genauer analysiert wird.

Anhand der Linienprofile (D) entlang des  $pn$ -Übergangs lässt sich die Diffusionsspannung  $V_{pn}$  im Innern der Nadeln messen: Bei der  $p$ -Si-Nadel ist  $V_{pn} = 1.0V$ . Dieser Wert ist konsistent mit der Silizium-Bandlücke von  $E_{gap}^{Si}/e = 1.1V$  und den hohen Dotierstoff-Konzentrationen, und kann mithilfe der Formel

$$V_{pn} = V_{-\infty} - V_{\infty} = E_g + k_B T \log \left( \frac{N_D N_A}{N_c P_v} \right) \quad (6.4)$$

abgeschätzt werden [Sze (1981)]. Darin bedeuten  $k_B$  die Boltzmann-Konstante,  $T$  die Temperatur,  $N_c$  und  $P_v$  die Zustandsdichten für Leitungs- und Valenzband. Durch Einsetzen der Werte  $T = 293K$ ,  $N_D = 5 \cdot 10^{18} cm^{-3}$ ,  $N_A = 1 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ ,  $N_c = 9.66 \cdot 10^{18} cm^{-3}$ ,  $P_v = 5.56 \cdot 10^{18} cm^{-3}$  erhält man  $V_{pn} = 1.1V$ . Bei der Berechnung wurde jedoch der Idealfall angenommen, dass alle Dotanden elektrisch aktiv sind, wodurch dieser Wert einer oberen Grenze entspricht. Somit ist der etwas kleinere gemessene Wert in sehr guter Übereinstimmung mit dem berechneten.

Dagegen misst man im Linienprofil (Abb. 6.3 D) der  $n$ -Si-Nadel nur eine Diffusionsspannung von  $V_{pn} = 0.5V$ , obwohl die Gl. (6.4) nach Einsetzen der Dotierstoff-Konzentrationen  $N_D = 3 \cdot 10^{18} cm^{-3}$  und  $N_A = 6 \cdot 10^{17} cm^{-3}$  einen Wert von  $V_{pn} = 1.0V$  liefert. Diese Diskrepanz wird durch die geringe Breite der  $n$ -Schicht  $w_n \approx 100 nm$  (Abb. 6.2) verursacht: Damit sich die volle Diffusionsspannung nach Gl. (6.4) ausbilden kann, muss die  $n$ -Schicht mindestens die doppelte Breite<sup>5</sup> der Raumladungszone (RLZ)  $w_{RLZ}$  besitzen. Die RLZ berechnet sich anhand der Beziehung [Sze (1981)]

$$w_{RLZ} = \sqrt{\frac{2\epsilon_r \epsilon_0 V_{pn} (N_A + N_D)}{N_A N_D}} \quad (6.5)$$

<sup>5</sup>Die  $n$ -Si-Nadel besitzt zwei  $pn$ -Übergänge wegen deren  $pnp$ -Struktur.

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

und den Werten  $N_D = 3 \cdot 10^{18} \text{cm}^{-3}$ ,  $N_A = 6 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ ,  $V_{pn} = 1.0 \text{V}$  und  $\epsilon_r = 12$  (Dielektrizitätszahl für Silizium) zu  $w_{RLZ} = 52 \text{nm}$ . Diese Gleichung liefert eine untere Grenze für die Breite der RLZ, da sie für den Fall eines abrupten  $pn$ -Übergangs gilt. Letzteres trifft jedoch insbesondere beim linken  $pn$ -Übergang in der n-Si-Nadel nicht zu, wie der Verlauf des Linienprofils in Abb. 6.3 (D) offenbart. Damit ist die tatsächliche RLZ wahrscheinlich breiter. Zudem stellt sich die Frage, welche Auswirkung die anhand der Isopotentialfläche festgestellte, oben bereits erwähnte Ausschmierung des Potentials auf die quantitative Messung am  $pn$ -Übergang hat. Sowohl die geringe Breite der  $n$ -Schicht als auch die Ausschmierung des Potentials können dazu beitragen, dass sich in der n-Si-Nadel nicht die volle Diffusionsspannung ausbildet.

Des Weiteren kann das Mittlere Innere Potential beider Nadeln aus dem mittleren Offset der Potentialprofile in Abbildung 6.3 (D) abgelesen werden. Demzufolge ist das MIP der p-Si-Nadel mit  $V_0 = 11.4 \text{V}$  um  $2.0 \text{V}$  geringer als das der n-Si-Nadel mit  $V_0 = 13.4 \text{V}$ . Der von Kim et al. (1998) mittels DFT-Rechnungen bestimmte Wert für das MIP von Silizium liegt mit  $V_0^{DFT} = 12.2 \text{V}$  zwischen beiden experimentellen Werten. Über die Ursachen dieser Abweichungen kann leider nur spekuliert werden: Obwohl die Parameter bei der Präparation und im Experiment bei beiden Nadeln praktisch identisch gewesen sein sollten, könnten sich störende Einflüsse bspw. infolge von Gallium Implantation durch die FIB oder Aufladungen im TEM unterschiedlich auf die Ergebnisse ausgewirkt haben. Diese These stützen auch die bereits oben erwähnten verschiedenen Oberflächeneigenschaften der Nadeln. Um diesen Fragen auf den Grund gehen zu können, müssten weitere 3D-Untersuchungen folgen.

Dennoch darf resumiert werden, dass die EHT einen einzigartigen quantitativen Zugang zu den 3D-Potentialen von dotierten Halbleitern bietet. Die Messung der Diffusionsspannung am  $pn$ -Übergang erfolgt direkt im inneren des elektrisch aktiven Kerns und ist daher nicht mehr verfälscht durch Projektionseffekte (dead layer). Das MIP kann ohne zusätzlichen Annahmen (Dicke, mittlere freie Weglänge) aus dem 3D-Potential abgelesen werden. Aus den erzielten Resultaten erwachsen neue Fragestellungen, die es in Zukunft zu klären gilt.

### 6.3.3. n-Dotierte Germanium-Nadel

Ein weiteres Beispiel für die erfolgreiche Anwendung der EHT ist die Rekonstruktion des 3D-Potentials einer FIB-präparierten, nadelförmigen Probe aus Germanium ( $n$ -Ge-Nadel). Diese wurde aus einem  $p$ -dotierten Wafer (Gallium,  $\bar{N}_A \approx 1 \cdot 10^{18} \text{cm}^{-3}$ ) hergestellt, dessen Oberfläche zuvor durch Ionen-Implantation von Phosphor ( $\bar{N}_D \approx 3 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$ )  $n$ -dotiert worden war.

Die wichtigsten experimentellen Fakten zu Aufnahme und Rekonstruktion finden sich in Abschnitt 6.1. Dabei wurde wie bei den Si-Nadeln die Symmetrie ausgenutzt, um den Kippbereich für die tomographische Rekonstruktion zu erweitern (Abschn. 5.5.8).

Abbildung 6.4 (A) zeigt das 3D-Rendering des rekonstruierten Potentials der zylinderförmigen  $n$ -Ge-Nadel. Die rote Isopotentialfläche ( $14.42 \text{V}$ ) trennt die

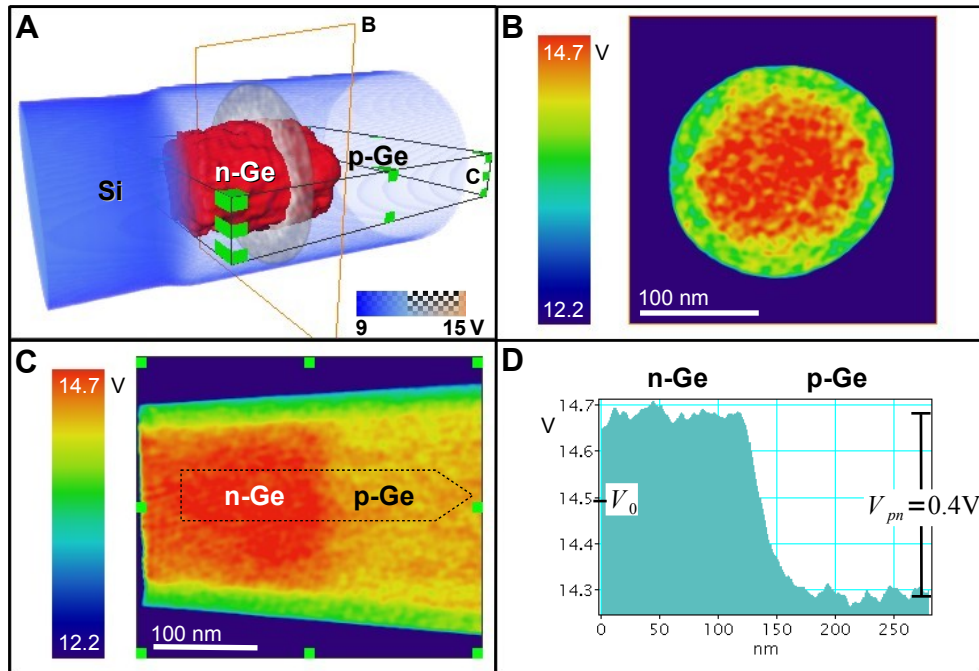


Abbildung 6.4.: 3D-Potential einer Germanium-Nadel mit  $pn$ -Übergang.

A: 3D-Rendering mit 14.42 V Isopotentialfläche (rot).

B: Querschnitt an der in (A) gezeigten Position.

C: Längsschnitt über eine Dicke von 50 nm gemittelt (Bereich für Mittelung in A markiert).

D: Linienprofil entlang des Pfeils in (C) über eine Breite von 33 nm gemittelt.

Die Daten wurden mittels NAD (Abschn. 4.6) leicht geglättet.

$n$ -Schicht ( $V_n > 14.42\text{ V}$ ) von der  $p$ -Schicht ( $V_n < 14.42\text{ V}$ ). Vor der  $n$ -Schicht sieht man eine amorphe Siliziumschicht (blau), die zum Schutz der interessierenden Probenstelle vor der eigentlichen FIB-Präparation aufgesputtert wurde. Für das amorphe Silizium wurde ein Mittelwert von 11 V gemessen, welcher aufgrund der geringeren Dichte der Atome kleiner als das MIP von kristallinen Silizium ist ( $V_0^{DFT} = 12.2\text{ V}$  [Kim et al. (1998)]).

Um den Potentialverlauf längs des  $pn$ -Überganges im Innern der Nadel zu bestimmen, wurde zunächst über eine Dicke von 50 nm gemittelt. Abbildung 6.4 (C) zeigt den dabei erhaltenen 2D-Längsschnitt der Nadel. In diesem wird schließlich das Linienprofil (Abb. 6.4 D) an der durch den Pfeil markierten Stelle gemessen. Das Linienprofil offenbart eine Diffusionsspannung am  $pn$ -Übergang von  $V_{pn} = 0.4\text{ V}$ . Dieser Wert ist etwas kleiner als die Bandlücke in Ge von  $E_{gap}^{Ge} = 0.66\text{ V}$ . Zwar ist die oben angegebene Dotierung hoch genug, damit sich nach Gl. (6.4) eine Diffusionsspannung von mindestens 0.6 V ausbilden müsste. Dennoch ist die in der Nadel gemessene geringere Diffusionsspannung plausibel: Zum

einen können Oberflächeneffekte, zum andern der weniger abrupte  $pn$ -Übergang<sup>6</sup> die Diffusionsspannung reduzieren.

Aus Abbildung 6.4 (D) kann außerdem ein MIP-Wert für Germanium von  $V_0 = 14.5\text{ V}$  abgelesen werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit den mittels DFT berechneten Wert von  $V_0^{DFT} = 14.67\text{ V}$  überein [Kruse et al. (2006)].

### 6.3.4. Untersuchung der Diffusionsspannung

Die rekonstruierten 3D-Potentiale erlauben es, Oberflächeneffekte und Präparationsartefakte (dead layer) der FIB quantitativ auszuwerten. Dazu wird in den 2D-Längsschnitten der p-Si-, n-Si- und n-Ge-Nadel (jeweils (C) in den Abbildungen 6.3 und 6.4) der Verlauf der Diffusionsspannungen von Objektkante zu Objektkante analysiert. Für jede der drei Nadeln wird zwischen den beiden Linienprofilen im  $n$ - und  $p$ -Gebiet an den in Abbildung 6.5 markierten Positionen die Differenz berechnet. Daraus ergeben sich die jeweils rechts neben den Längsschnitten gezeigten Profile: Die Diffusionsspannung unterhalb der amorphen Totschicht (dead layer) erreicht nicht sofort, sondern erst nach einer Übergangsschicht den Maximalwert. Die Breite der Übergangsschicht  $w_H$  ist bei allen drei Nadeln unterschiedlich: In der großen p-Si-Nadel (Kantenlänge des quadratischen Querschnitts ca.  $400\text{ nm}$ ) ist  $w_H \approx 95\text{ nm}$ , in der mittelgroßen n-Si-Nadel (Kantenlänge des quadratischen Querschnitts ca.  $350\text{ nm}$ ) ist  $w_H \approx 60\text{ nm}$  und in der kleinen n-Ge-Nadel (Radius des runden Querschnitts ca.  $230\text{ nm}$ ) ist  $w_H \approx 30\text{ nm}$ . Diese relativ breiten Übergangsschichten dürfen demzufolge bei der quantitativen Bestimmung der Diffusionsspannung aus 2D-Phasenverteilungen nicht wie in Gl. (6.3) unberücksichtigt bleiben. Lenk (2008) schlägt diesbezüglich einen linearen Anstieg der Diffusionsspannung vor, was angesichts der Graphen in Abb. 6.5 plausibel erscheint.

Die Breite des elektrisch aktiven Kerns ist mit  $155\text{ nm}$  bei beiden Si-Nadeln gleich groß. Es muss aber berücksichtigt werden, dass die Diffusionsspannung im Innern der n-Si-Nadel nur halb so groß ist. Die n-Ge-Nadel besitzt einen elektrisch aktiven Kern von  $105\text{ nm}$ . Für künftige 3D-Untersuchungen wäre diesbezüglich interessant, bis zu welchem kleinsten Querschnitt noch ein elektrisch aktiver Kern bleibt.

## 6.4. Halbleiter-Nanodrähte

Quasi-eindimensionale Halbleiter-Nanostrukturen in Form von Drähten (*nanowires*, NW) gelten als sehr vielversprechende Bauelemente für den Einsatz in der Nano- und Optoelektronik oder in der Photovoltaik, z.B. als Dioden, Laser, Lichtleiter oder Photodetektoren [Duan et al. (2001, 2003); Tian et al. (2007)]. Die Herstellung solcher Nanodrähte erfolgt bspw. mithilfe der metallorganischen Gasphasenepitaxie (*Metal Organic Chemical Vapor Phase Epitaxy*, MOVPE), einer Epitaxiemethode

---

<sup>6</sup>Bei Dotierung durch Ionenimplantation ist der Wechsel in der Konzentration der Dotanden nicht so abrupt.



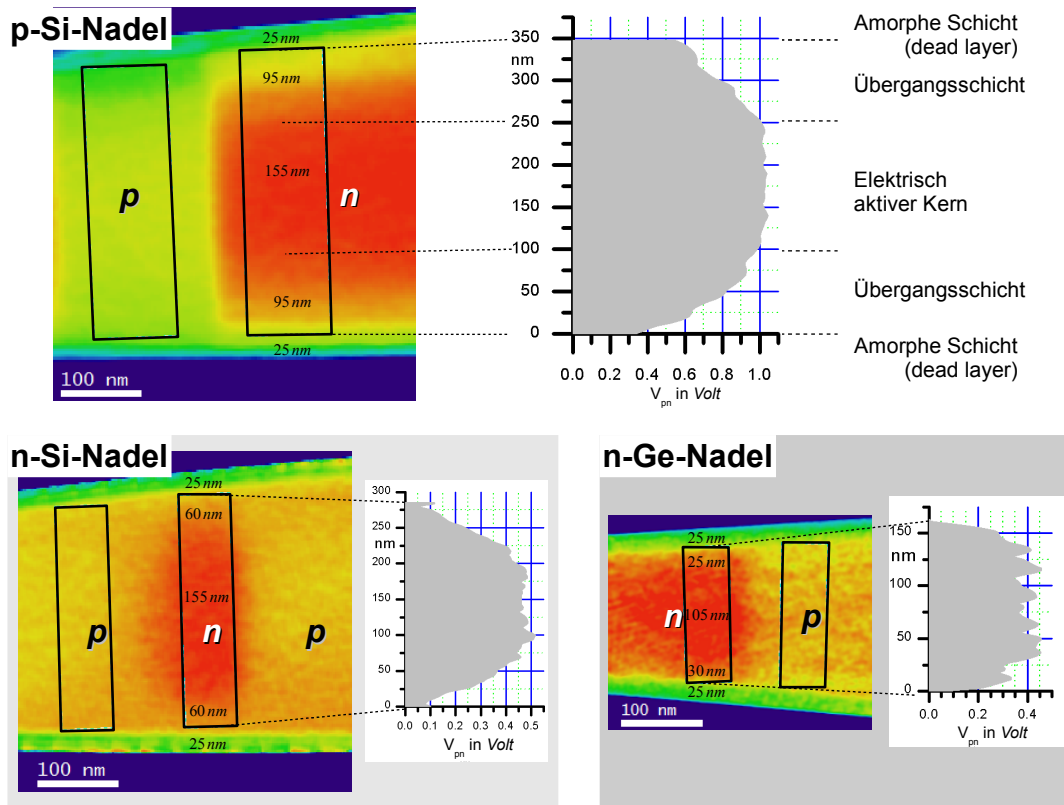


Abbildung 6.5.: Bestimmung des Verlaufs der Diffusionsspannung  $V_{pn}$  längs des  $pn$ -Übergangs im Längsschnitt der FIB-präparierten, dotierten Halbleiter-Nadeln. Man beachte, dass alle Nadeln im gleichen Maßstab dargestellt sind. Die Dicke der Totschicht ist in allen Beispielen  $25\text{ nm}$ .

zum Wachstum von kristallinen Schichten [Wagner und Ellis (1964); Prete et al. (2008)]. Dabei dient ein Metallteilchen (meist Gold) als Katalysator für den Wachstumsprozess des Halbleiters. Vor allem im Hinblick auf die fortschreitende Miniaturisierung von Schaltelementen bietet dieser sogenannte *bottom-up*-Ansatz (im Vergleich zum in der Halbleiterindustrie derzeit benutzten *top-down*-Ansatz) großes Potential.

In dieser Arbeit wurden vier Halbleiter-Nanodrähte, die aus den III-V Verbindungen GaAs und AlGaAs bestehen, mittels Holographischer Tomographie in 3D untersucht. Die experimentellen Details zur 3D-Rekonstruktion der Nanodrähte sind bereits im Abschnitt 6.1 angegeben. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sollen in diesem Abschnitt präsentiert werden. Dabei wird zunächst die kristallographische Struktur eines GaAs-Nanodrahtes anhand der Morphologie seines rekonstruierten 3D-Potentials identifiziert (Abschn. 6.4.1). Danach wird gezeigt, dass es mithilfe der EHT möglich ist, die Kern-Schale Struktur eines AlGaAs-GaAs-Nanodrahtes quantitativ zu rekonstruieren (Abschn. 6.4.2). Zum Schluss werden die Mittleren Inneren Potentiale aller vier Nanodrähte aus GaAs

und AlGaAs (Abschn. 6.4.3) bestimmt und miteinander verglichen.

### 6.4.1. GaAs-Nanodraht

Nanodrähte mit Zinkblende-Kristallstruktur wie GaAs oder GaP wachsen vorzugsweise in  $\langle 111 \rangle B^7$ -Richtung. Das Wachstum entlang dieser Richtung führt jedoch zu einer hohen Zahl von Defekten, die häufig in Form von Zwillingskorngrenzen auftreten. Das Verständnis solcher Defekte ist zum Beispiel für die Verbesserung der Effizienz der Nanodrähte als opto-elektronische Bauelemente von großer Bedeutung.

Nach Johansson et al. (2006, 2007) wird ein Segment zwischen zwei Zwillingskorngrenzen (*ortho twins*) durch die acht  $\{111\}$ -Facetten terminiert (Abb. 6.6 C). Zudem ordnen sich zwei benachbarte Segmente bzgl. der Kristallorientierung um  $60^\circ$  gedreht an, und bilden dabei einen Oktaederzwilling. Dieser besitzt statt der  $\{112\}$ -Facetten ohne Zwillingskorngrenzen (s. Abb. 6.6 (C) unten), alternierende  $\{111\} A$  (Galium terminiert) und  $\{111\} B$  (Arsen terminiert) Mikrofacetten.

Das mittels EHT rekonstruierte 3D-Potential des GaAs-Nanodrahtes weist genau die im Modell beschriebene Mikrofacetttierung an den Seitenflächen auf, wie die 10 V-Isopotentialfläche in Abbildung 6.6 (A) verdeutlicht. Dies bestätigt auch die Verzerrung der hexagonalen Querschnitte innerhalb eines Segmentes (Abb. 6.6 B).

### 6.4.2. GaAs/AlGaAs-Nanodraht

Nanodrähte (NWs) können bzgl. ihrer elektronischen und optischen Eigenschaften verbessert werden, wenn sie von einer Schale mit einer höheren Bandlücke als der Kern ummantelt werden. Dies führt zur Passivierung bzw. Unterdrückung der Oberflächenzustände des Kern-Materials [Titova et al. (2006); Prete et al. (2008)] und zur Erhöhung der Mobilität der Ladungsträger [Jiang et al. (2007); Prete et al. (2008)].

Zur Herstellung eines GaAs/AlGaAs Nanodrahtes mit GaAs-Kern und AlGaAs-Schale mittels MOVPE lässt man zuerst den GaAs-Kern bei  $400^\circ\text{C}$  und danach die  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ -Schale um den Kern herum bei  $650^\circ\text{C}$  wachsen [Prete et al. (2008)]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde solch ein GaAs/AlGaAs Nanodraht in 3D untersucht. Die wichtigsten Angaben zu Aufnahme und Rekonstruktion sind in Abschn. 6.1 (s. Spalte GaAs/AlGaAs-Draht in den Tabellen) aufgelistet.

Abbildung 6.7 zeigt das mittels EHT rekonstruierte 3D-Potential. Aufgrund der unterschiedlichen Mittleren Inneren Potentiale von GaAs und AlGaAs ist die Kern-Schale-Struktur im 3D-Rendering (Abb. 6.7 A) deutlich sichtbar. Des Weiteren gibt die Darstellung der 9V-Isopotentialfläche (Abb. 6.7 B) Aufschluss über die Morphologie. Im hinteren Teil des NWs sind die zur  $\langle 111 \rangle$ -Kristall-Wachstumsrichtung gehörenden  $\{112\}$ -Facetten klar zu erkennen.

---

<sup>7</sup>Mit B ist eine Schicht in der Stapelfolge AB gemeint (A - Galium und B - Arsen oder Phosphor), was für den untersuchten GaAs-Nanodraht bedeutet, dass dieser in Richtung der Normalen der Oberfläche gewachsen ist, die mit Arsen abschließt.

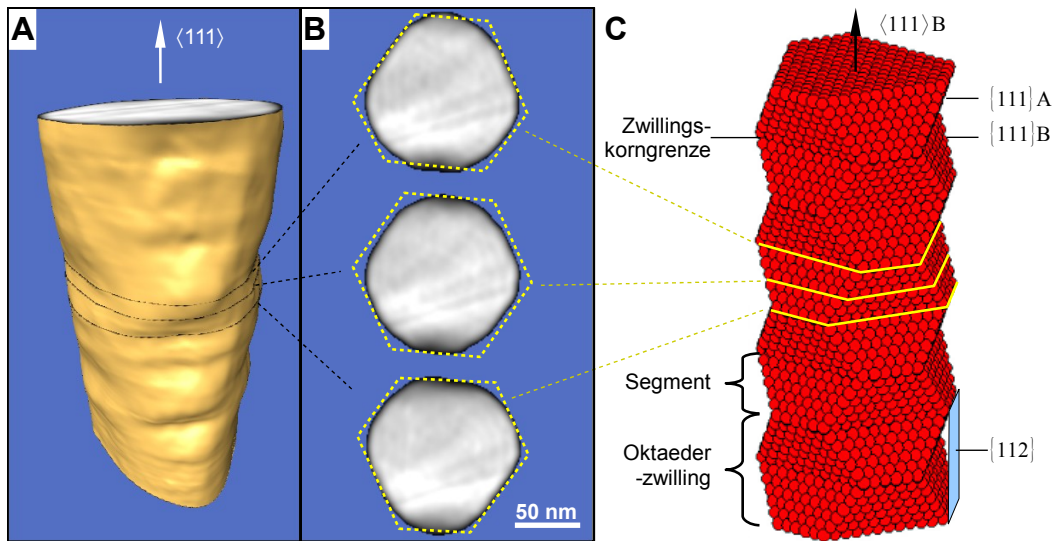


Abbildung 6.6.: 3D-Morphologie eines mittels EHT rekonstruierten GaAs-Nanodrahtes. Die 10 V-Isopotentialfläche (A) zeigt die durch das Modell (C) beschriebene Mikrofacettierung. Aus der Form der drei Querschnitte (B) lässt sich die entsprechende Position innerhalb eines Segmentes im Modell zuordnen. Das Modell wurde aus Johansson et al. (2006) entnommen, ist jedoch bedeutend kleiner (ca. 10 nm Durchmesser) als der experimentelle Nanodraht (ca. 100 nm Durchmesser).

Dagegen ist die Kristallstruktur zur Spitze hin erheblich gestört (wenig definierte Facetten).

Zur weiteren Analyse wird zunächst der Querschnitt des Nanodrahtes (Abb. 6.7 C) mit den DFT-Werten für das MIP von GaAs und AlGaAs modelliert. Der Wert des GaAs-Kerns von  $V_{0,DFT}^{GaAs} = 14.19V$  ist aus Dichte-Funktional-Theorie (DFT) Rechnungen von Kruse et al. (2006) bekannt. In derselben Publikation findet sich auch ein Wert für AlAs von  $V_{0,DFT}^{AlAs} = 12.34V$ . Zur Berechnung des MIPs der  $Al_{0.33}Ga_{0.67}As$ -Schale bedarf es der Verwendung der stöchiometrischen Faktoren zur Gewichtung:  $V_{0,DFT}^{AlGaAs} = 0.33 V_{0,DFT}^{AlAs} + 0.67 V_{0,DFT}^{GaAs} = 13.58V$ . Somit bleibt eine Potenzialdifferenz zwischen Kern und Schale von 0.61 V. Zudem wird die Form von Schale und Kern entsprechend der  $\langle 111 \rangle$ -Kristall-Wachstumsrichtung als hexagonal angenommen. Aus dem so modellierten Querschnitt (Abb. 6.7 E) wird ein Sinogramm berechnet, und daraus schließlich wieder das Modell rekonstruiert. Dabei werden identische Parameter wie im Experiment benutzt (Kippwinkelbereich, W-SIRT, Iterationen). Abbildung 6.7 (D) zeigt den rekonstruierten Querschnitt des Modells. Dieser ist dem experimentellen Querschnitt (C) sehr ähnlich und belegt somit, dass die Artefakte im Experiment, d.h. die Potentialschwankungen innerhalb von Schale und Kern, vor allem vom Missing Wedge herrühren.

Die gute Übereinstimmung der beiden rekonstruierten Querschnitte zeigen in Abbildung 6.7 (F) auch die Linienprofile (grün - Experiment, rot - Modell). Dagegen

gibt es deutliche Abweichungen zum Linienprofil des Modells (grau ausgefüllt) infolge des Missing Wedge in den Rekonstruktionen.

Resümee: Mittels EHT lässt sich sowohl die Kern-Schale-Struktur als auch die 3D-Morphologie des GaAs/AlGaAs-Nanodrahtes eindeutig rekonstruieren. Aufgrund der Übereinstimmung mit der Rekonstruktion eines Modells (Verwendung von DFT-Potentialen, hexagonaler Querschnitt von Kern und Schale) konnte verifiziert werden, dass zum einen die Struktur des experimentellen NWs sehr gut verstanden ist, und zum anderen der Großteil der Artefakte im Experiment vom Missing Wedge herrührt. Für eine artefaktfreie direkte Rekonstruktion der 3D-Struktur ist damit eine Vermeidung des Missing Wedge von höchster Priorität.

### 6.4.3. Bestimmung der Mittleren Inneren Potentiale

Zusätzlich zu den beiden in den vorangegangenen Abschnitten präsentierten Nanodrähten (GaAs-Draht I und GaAs/AlGaAs-Draht) wurden zwei weitere Nanodrähte (GaAs-Draht II und AlGaAs-Draht) mittels Holographischer Tomographie dreidimensional rekonstruiert. Die wichtigsten experimentellen Details zu Aufnahme und Rekonstruktion sind in Abschnitt 6.1 angegeben.

Die 3D-Potentialverteilungen der vier Nanodrähte sind in Abbildung 6.8 dargestellt. Beim Vergleich der Morphologie der beiden GaAs-Nanodrähte ist festzustellen, dass die Seitenflächen beim zweiten NW nicht wie beim ersten die  $\{111\}$ -Mikrofacettierung aufweisen (Abschn. 6.4.1), sondern durchgängig glatten  $\{112\}$ -Facetten entsprechen. Da die jeweils benachbarten  $\{112\}$ -Facetten unterschiedlich groß sind, besitzt der Querschnitt des zweiten NWs dreizählige Symmetrie (s. Abb. 6.8). Nach Verheijen et al. (2007) können je nach Temperatur während des Wachstumsprozesses beide Morphologietypen in GaAs-Nanodrähten auftreten<sup>8</sup>.

Das MIP und dessen Fehler lassen sich anhand der Peakposition und -breite (FWHM) im Histogramm des 3D-Potentials (Abbildung 6.8, rechts) identifizieren. Die für die vier Nanodrähte bestimmten MIP-Werte und deren Fehler sind in Tabelle 6.5 zusammen mit den DFT-Werten aufgelistet. Das ermittelte MIP von GaAs-Draht I stimmt sehr gut mit dem DFT-Wert und mit einem weiteren mittels EH experimentell bestimmten Wert von 14.18 V überein [Kruse et al. (2003)]. Dagegen liegen die MIPs der anderen Nanodrähte ca. 1 V unter den DFT-Werten.

Eine mögliche Ursache dafür ist der Einfluss des Missing Wedge. Zwar wurden die 3D-Potentiale mithilfe der in Abschnitt 5.5.7 vorgestellten Methode korrigiert, die Genauigkeit der Korrektur ist jedoch begrenzt (Einschränkungen s. Abschn. 5.5.7). Auch dynamische Effekte der Elektron-Objekt-Wechselwirkung, welche i.d.R. die Phasenschiebung des Nullstrahls verringern [Lubk et al. (2010)], können zu dieser Diskrepanz beitragen. Des Weiteren muss insbesondere bei höheren Kippungen mitunter toleriert werden, dass Bereiche der löchrigen Kohlenstoff-Trägerfolie die projizierte Potentialverteilung des NWs überlagern. Dies wirkt sich auf das

---

<sup>8</sup>Die Mikrofacettierung ist bei niedrigeren Herstellungstemperaturen (GaAs-Draht I) wahrscheinlicher als bei höheren Temperaturen (GaAs-Draht II).

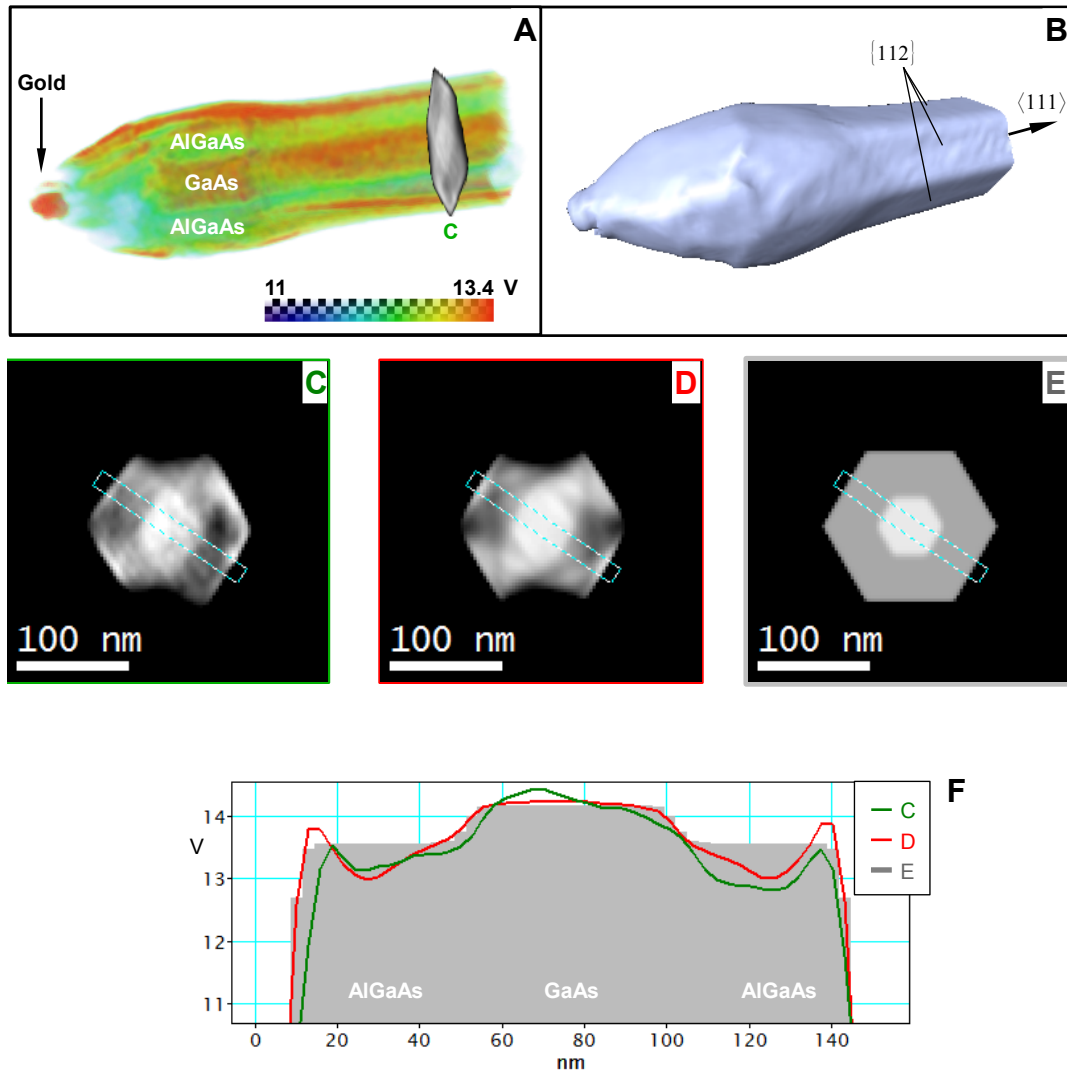


Abbildung 6.7.: 3D-Potential eines GaAs/ $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  Nanodrahtes (NW) mit Kern-Schale Struktur.

**A:** 3D-Rendering zur Darstellung der inneren Struktur. Die leicht unterschiedlichen MIPs von GaAs und  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$  liefern den Kontrast zwischen Kern und Schale.

**B:** 9V-Isopotentialfläche zur Darstellung der äußeren Struktur.

**C:** Querschnitt des NWs an der in (A) gezeigten Position.

**D:** Rekonstruktion des Querschnitts aus den Projektionen des Modells (E) bei identischen Parametern wie im Experiment.

**E:** Modell des hexagonalen Querschnitts aus den DFT-Werten für das MIP von GaAs und  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ .

**F:** Linienprofile von (C-E). Zum besseren Vergleich der Potentialdifferenz zwischen Kern und Schale wurden die Potentialwerte in (C) und (D) durch Addition eines konstanten Offsets auf das Niveau des Modells gebracht.

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale

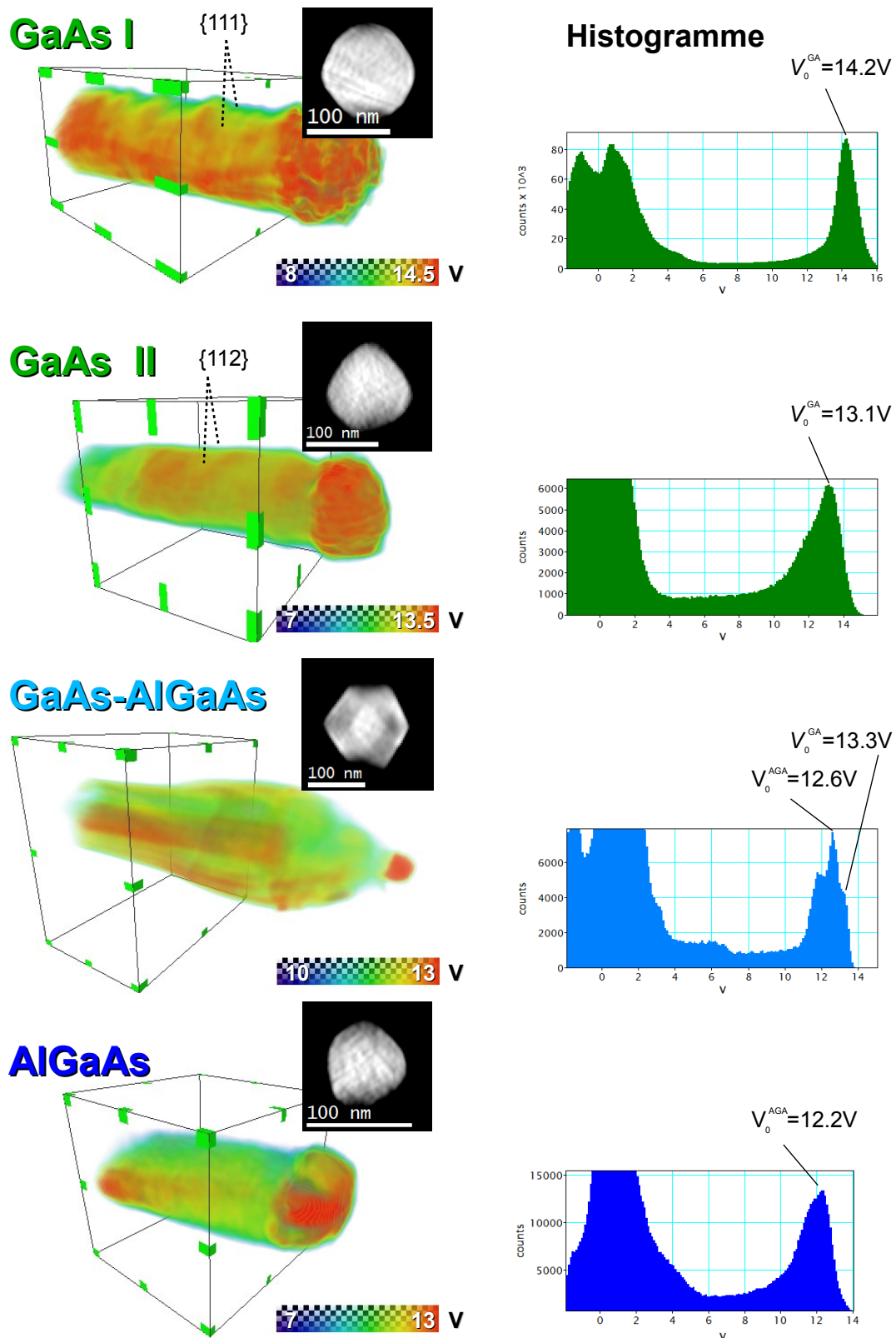


Abbildung 6.8.: Mittels EHT rekonstruierte 3D-Potentiale von vier verschiedenen III-V-Halbleiter-Nanodrähten.

**Links:** 3D-Rendering mit zugehörigen Querschnitten.

**Rechts:** Histogramme der links in schwarz-grün markierten Teilvolumina. Die Peaks der Histogramme geben Aufschluss über die MIP-Werte.

rekonstruierte 3D-Potential aus und verringert die Präzision des daraus bestimmten MIPs.

Die systematisch zu kleinen MIP-Werte sind dennoch zueinander konsistent: Zum einen besitzt in jeder Messung GaAs ein höheres Potential als AlGaAs. Zum anderen besitzt das AlGaAs mit der höheren Ga-Konzentration auch das höhere MIP, wie der Vergleich des GaAs/Al<sub>0.33</sub>Ga<sub>0.67</sub>As-Drahtes mit dem reinen Al<sub>0.6</sub>Ga<sub>0.4</sub>As-Draht zeigt (s. Tab. 6.5).

Nicht zuletzt stellt sich die Frage, wie genau das mittels DFT bestimmte Potential die Verhältnisse in den Nanodrähten beschreibt. Das DFT-Potential hängt u.a. von der Oberflächenterminierung ab [Kim et al. (1998); Kruse et al. (2006)]. So ist es möglich, dass das MIP von GaAs-Draht I besser mit dem DFT-Wert übereinstimmt, weil der Draht eine andere Morphologie als GaAs-Draht II besitzt (s. oben).

	$V_0^{GaAs}$	$V_0^{Al_{0.33}Ga_{0.67}As}$	$V_0^{Al_{0.6}Ga_{0.4}As}$
DFT [Kruse et al. (2006)]	14.19 V	13.58 V	13.08 V
GaAs-Draht I	$(14.2 \pm 0.6)V$		
GaAs-Draht II	$(13.1 \pm 0.9)V$		
GaAs/Al <sub>0.33</sub> Ga <sub>0.67</sub> As-Draht	$(13.3 \pm 0.5)V$	$(12.6 \pm 0.5)V$	
Al <sub>0.6</sub> Ga <sub>0.4</sub> As-Draht			$(12.2 \pm 0.7)V$

Tabelle 6.5.: MIP-Werte für GaAs und AlGaAs. Die experimentellen Werte entsprechen den Peaks in den Histogrammen der rekonstruierten 3D-Potentiale.

## 6. 3D-Abbildung elektrostatischer Potentiale



## 7. Zusammenfassung und Ausblick

Der hoch aktuelle und zunehmend an Bedeutung gewinnende Forschungsbereich der Nanowissenschaften benötigt eine leistungsfähige Transmissionselektronenmikroskopie zur Aufklärung der Struktur-Eigenschafts-Beziehung von Materialien im Nanometerbereich. Dabei spielen insbesondere die durch die Nanostrukturen hervorgerufenen intrinsischen elektrischen und magnetischen Potential- bzw. Feldverteilungen eine entscheidende Rolle. Das elektronenmikroskopische Verfahren der holographischen Tomographie (EHT) bietet Zugang genau zu dieser Information. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die EHT von einer manuell aufwendigen zu einer weitgehend automatisierten Methode zur quantitativen 3D-Abbildung von elektrostatischen Potentialen bei einer Auflösung von wenigen (5-10) Nanometern entwickelt. Dazu wurde innerhalb der Bildverarbeitungssoftware DigitalMicrograph(TM)<sup>1</sup> eine Vielzahl neuer Prozeduren und Routinen erstellt, die meist in einem Schritt die entsprechende Operation auf den kompletten Datensatz einer Serie von Hologrammen, Objektwellen, Amplituden oder Phasen ausführen. Die dafür teilweise erforderlichen Parameter können einfach über eine Benutzeroberfläche eingestellt werden. Einige der Prozeduren sind so implementiert, dass sie die gesamte Rechenleistung der heute standardmäßig verwendeten Multi-Kern-Prozessoren (durch *multi-threading*) nutzen können.

Die Automatisierung des umfangreichen Arbeitsflusses (Aufzeichnung, holographische Rekonstruktion, Ausrichtung und tomographische Rekonstruktion) erlaubt nun in angemessener Zeit (ein bis zwei Tage), das 3D-Potential einer Probe reproduzierbar und exakt zu rekonstruieren.

### Aufzeichnung einer holographischen Kippserie

In dieser Arbeit wurde das erste Softwarepaket (THOMAS) für die (halb-)automatische Aufzeichnung von holographischen Kippserien, bestehend aus Objekt- und Leerhologrammen entwickelt. THOMAS enthält eine Reihe von Prozeduren, z.B. zur Kalibrierung, zur Bestimmung des Euzentrischen Punktes, zur Ermittlung der optimalen Leerhologrammposition und zur automatischen Verschiebungskorrektur, die dem TEM-Benutzer über eine intuitiv zu bedienende Benutzeroberfläche bereitgestellt werden. Verglichen mit rein manueller Vorgehensweise verkürzt sich mit THOMAS die Dauer für die Aufnahme einer holographischen Kippserie auf weniger als ein Drittel.

---

<sup>1</sup>Gatan Inc., Pleasanton, USA

Mittlerweile beträgt die Aufnahmezeit im Mittel etwa 2-3 Stunden. Aufgrund seiner objektorientierten Softwarestruktur konnte THOMAS bereits an vier verschiedene Elektronenmikroskoptypen adaptiert werden.

### Holographische Rekonstruktion

Im holographischen Rekonstruktionsschritt werden zunächst in Objekt- und Leerhologrammkippserie die fehlerhaften Pixel (durch Imperfektionen der CCD-Kamera oder Röntgeneinschläge) und die Fresnel-Modulationen (durch Beugung am defokussierten Biprisma) beseitigt. Für die eigentliche holographische Rekonstruktion wurde ein spezielles sinc-förmiges (Sinc=sinus cardinalis) Filter für das Ausschneiden des Seitenbandes erstellt, womit artifizielle Abschneideeffekte („Überschwinger“) in rekonstruierter Amplitude und Phase vermieden werden. Die durch automatische Unwrapping-Algorithmen erhaltenen Phasenverteilungen werden gegebenenfalls durch ein selbstentwickeltes interaktives Software-Tool korrigiert.

### Ausrichtung einer Kippserie (Verschiebungskorrektur der Einzelprojektionen)

Standardmäßig benutzt man zur Ausrichtung von Kippserien die Kreuzkorrelation und die Ausrichtung mithilfe von Bezugspunkten (Fiducial-Marker alignment). Bei den in dieser Arbeit sehr häufig untersuchten stabförmigen Proben sind jedoch beide Methoden ungeeignet, letztere wegen fehlender (Gold-)Marker auf den Proben. Die Identifizierung der Verschiebungen erfolgte deshalb manuell mittels zweier verschiedener Ansätze. Im ersten Ansatz werden signifikante, in jeder Kippung auftretende Objektstrukturen (z.B. Kanten, Grenzflächen) durch Bezugslinien markiert, und deren Positionen für die Verschiebungskorrektur verwendet. Im zweiten Ansatz werden nicht die Projektionen selbst, sondern die zur Projektionsebene senkrechten Schnittebenen durch die Kippserie betrachtet, da dort Verschiebungen zwischen einzelnen Kippungen als zueinander verschobene 1D-Schnittlinien identifiziert werden können. Die daraus gewonnene Information wird zur Ausrichtung der Kippserie verwendet.

### Tomographische Rekonstruktion der 3D-Objektstruktur

Zur tomographischen Rekonstruktion der Kippserien wurde im Rahmen dieser Arbeit die Gewichtete (Weighted) Simultane Iterative Rekonstruktions-Technik (W-SIRT) basierend auf einer konventionellen SIRT entwickelt (Abschn. 5.5). Die Verwendung der Gewichteten Rückprojektion in jeder Iteration der W-SIRT führt insbesondere dazu, dass die W-SIRT bzgl. Konvergenz und Auflösung der SIRT (in welcher “nur” eine Einfache Rückprojektion verwendet wird) überlegen ist. Dennoch besitzen auch die mittels W-SIRT berechneten Tomogramme Artefakte (Missing Wedge), wenn diese nur aus einem begrenzten Winkelbereich rekonstruiert werden können. Das Problem des Missing Wedge lässt sich bei symmetrischen Objekten entschärfen, indem vorhandene Projektionen entsprechend der Objektsymmetrie

im fehlenden Winkelbereich für die tomographische Rekonstruktion nochmals verwendet werden. Diese Idee konnte bei den unten erwähnten dotierten Halbleiter-Proben erfolgreich umgesetzt werden.

Die W-SIRT und die Methoden zur Ausrichtung einer Kippserie sind in das selbstentwickelte Softwareprogramm namens "*Reconstruct 3D*" integriert. Dieses Programm bietet eine Benutzeroberfläche, über die die Parameter der W-SIRT (z.B. Zahl der Iterationen, Filtertyp, Breite des Randbereichs) einfach eingestellt werden können.

Darüberhinaus wurde der Einfluss von dynamischer Beugung in der Phasenkippsreihe auf das rekonstruierte 3D-Potential untersucht. Für den speziellen Fall einer Germanium-Probe wurde demonstriert, dass hierbei die dynamischen Effekte nur geringfügig die Präzision (ca.  $0.05\text{ V}$ ) reduzieren.

### Anwendung 1: Mit Gold beschattete Latexkugel

Anhand des rekonstruierten 3D-Potentials dieses einfachen Testobjektes lassen sich die wesentlichen Stärken der EHT aufzeigen:

1. Rekonstruktion der Morphologie: Im Tomogramm ist deutlich die Kugelform der Latexkugel<sup>2</sup> und die Wölbung der Kohlefolie am Rand zu erkennen.
2. Bestimmung des Mittleren Inneren Potentials (MIP): Ohne zusätzliche Annahmen über die Objektform wird im Histogramm des 3D-Potentials ein MIP von  $V_0 = (8.4 \pm 0.5)\text{ V}$  abgelesen.
3. Rekonstruktion der dreidimensionalen Objektstruktur: Die 3D-Rekonstruktion zeigt die amorphe Struktur des Polystyren-Latex im Inneren der Kugel und die Goldteilchen auf der Oberfläche.

### Anwendung 2: FIB-präparierte dotierte Halbleiter-Nadeln

Das 3D-Potential in dotierten Halbleiterstrukturen mit  $pn$ -Übergang setzt sich aus zwei wesentlichen Beiträgen zusammen, dem MIP und der Diffusionsspannung am  $pn$ -Übergang. Die mittels EHT rekonstruierten 3D-Potentiale von zwei Silizium-Proben und einer Germanium-Probe, die mit der FIB nadelförmig präpariert worden sind, weisen exakt diese beiden Beiträge auf. Im 3D-Potential der Nadeln wird die Diffusionsspannung direkt im Inneren ohne Projektions- und Oberflächeneffekte gemessen. Zusätzlich kann der Potentialverlauf von der Oberfläche ins Innere der Nadel studiert werden. Dabei stellt sich heraus, dass die durch die FIB-Präparation erzeugte amorphe Randschicht (dead layer) bei allen drei Nadeln ca.  $25\text{ nm}$  beträgt. An die dead layer schließt sich eine Übergangsschicht (ca.  $(30 - 100)\text{ nm}$ ) an, innerhalb der die Diffusionsspannung  $V_{pn}$  ansteigt, bis diese schließlich im Kern der Nadeln (ca.  $(100 - 150)\text{ nm}$ ) ihr Maximum ( $V_{pn} = 1\text{ V}$  bei Silizium,  $V_{pn} = 0.4\text{ V}$  bei Germanium) erreicht.

---

<sup>2</sup>Die einzige Einschränkung dabei ist die Elongation durch den Missing Wedge im Tomogramm.

### Anwendung 3: Gewachsene Halbleiter-Nanodrähte

Die 3D-Potentiale in epitaktisch gewachsenen Nanodrähten (nanowires, NWs) aus GaAs, AlGaAs wurden mittels EHT rekonstruiert. Die entsprechenden Isopotentialflächen der 3D-Potentiale machen die Facetten an der Oberfläche der NWs sichtbar, und erlauben Rückschlüsse über die dreidimensionale kristalline Struktur. Das rekonstruierte 3D-Potential des AlGaAs/GaAs-Nanodrahtes zeigt deutlich dessen Kern/Schale-Struktur, da sich GaAs-Kern und  $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ -Schale bezüglich des MIP um  $0.61\text{ V}$  unterscheiden. Es konnte außerdem nachgewiesen werden, dass die Artefakte in der 3D-Rekonstruktion hauptsächlich durch den Missing Wedge verursacht werden. Die aus den 3D-Potentialen von vier Nanodrähten bestimmten MIPs liegen i. d. R. um etwa  $0.7\text{ V}$  unter den DFT-Werten, sind aber zumindest untereinander konsistent.

### Leistungsvermögen und Grenzen

Aus der Analyse der in dieser Arbeit zahlreich rekonstruierten 3D-Potentialverteilungen lässt sich für die EHT eine derzeit erreichbare Lateralauflösung von ca.  $5 - 10\text{ nm}$  angeben. Die Auflösung in  $y$ -Richtung (parallel zur Kippachse)  $d_y$  ist ausschließlich durch die der holographisch rekonstruierten Phase limitiert ( $d_{hol} = 5 \dots 10\text{ nm}$ ). Dagegen hängt die Auflösung  $d_x$  auch vom Winkelinkrement  $\Delta\alpha$  und vom Objektdurchmesser  $D$  ab. Unter Verwendung des Crowther-Kriteriums (Gl. 4.17) und realistischen Werten von  $D = 100 \dots 400\text{ nm}$  bzw.  $\Delta\alpha = 2^\circ$  ergibt sich  $d_C = D \Delta\alpha / 2 = 2 \dots 7\text{ nm}$ . Mit  $d_x = \max(d_{hol}, d_C)$  ist somit  $d_x = d_y$ . Steht für die tomographischen Rekonstruktionen der volle Winkelbereich zur Verfügung, gilt für die Auflösung in  $z$ -Richtung  $d_z = d_x$ . Bei Missing Wedge verschlechtert sich infolge der Elongation die Auflösung in  $z$ -Richtung (Abschn. 4.3.4). Für die Rekonstruktion einer Kippserie aus einem Winkelbereich von  $\pm 70^\circ$  lässt sich mithilfe des Elongationsfaktors  $e_{xz}$  aus Gl. (4.20)  $d_z = e_{xz} \cdot d_x = 1.3 \cdot d_x$  abschätzen.

Die Signalauflösung (Potentialschwankung), welche hier die Standardabweichung  $\sigma_V$  eines Potentialwertes in einem Voxel der Größe  $d_x \times d_y \times d_z$  bedeutet, ist hauptsächlich durch das Phasenrauschen bedingt. Die Potentialschwankung steigt exponentiell mit der Objektdicke und ist proportional zu  $1/\sqrt{N_\alpha}$ , wobei  $N_\alpha$  für die Anzahl der zur Rekonstruktion benutzten Projektionen steht. Bei den oben erwähnten Objektdicken von ca.  $100 - 400\text{ nm}$  ergibt sich  $\sigma_V \approx 0.15 - 0.25\text{ V}$ . Dies konnte sowohl theoretisch durch Rauschsimulationen als auch experimentell in rekonstruierten 3D-Potentialverteilungen verifiziert werden.

### Ausblick: Anwendung der EHT in der Strukturbioogie

Die ET trägt durch die dreidimensionale Abbildung der vielfältigen Zellbestandteile wesentlich zum Verständnis des Aufbaus und der Wirkungsweise von Zellen in Organismen bei. Die dabei untersuchten organischen Makromoleküle leichter Elemente sind in konventionellen Abbildungen jedoch sehr kontrastarm, da

sie hauptsächlich Phasenobjekte sind. Die Fähigkeit der Elektronenholographie, Phasenkontrast praktisch vollständig zu übertragen, und die in dieser Arbeit erzielten Fortschritte bzgl. der Automatisierung der tomographischen Aufzeichnung, bieten ausgezeichnete Voraussetzungen für die Anwendung der EHT auch in der Strukturbilogie.

### **Ausblick: Methodische Weiterentwicklung**

Während dieser Arbeit erwies sich der Missing Wedge als Hauptproblem für die quantitative Auswertbarkeit der Tomogramme. Zur Reduzierung des Missing Wedges werden folgende Maßnahmen vorgeschlagen:

- Anwendung von Zwei-Achsen-Tomographie. Im FR reduziert sich der Missing Wedge zur “Missing Pyramid”.
- Präparation stab- oder kegelförmiger Proben; Nano-Partikel haben häufig bereits eine für Tomographie geeignete Form.
- Verwendung spezieller Probenträger, z.B. zylinderförmiger Einsätze (*cartridges*), die den vollen Kippbereich von  $\pm 90^\circ$  zulassen.
- Verwendung spezieller Probenhalter; z.B. Tomographie-Halter des Modells 2050 der Firma E.A. Fischione Instruments, USA.

Im Arbeitsfluss der EHT haben sich die manuelle Ausrichtung der Kippserie und das nur teilweise automatisierte Phase-Unwrapping, insbesondere bei nadelförmigen Proben, als am zeitintensivsten herausgestellt. Zur Automatisierung dieser Probleme wird die Entwicklung neuer Algorithmen (bspw. zur Mustererkennung und Kantendetektion) angestrebt.

Des Weiteren bleibt nach dieser Arbeit weitgehend offen, wie groß der Einfluss von dynamischer Streuung und Aufladungen der Probe durch Emission von Sekundärelektronen während der Abbildung auf das rekonstruierte 3D-Potential ist. Zum Studium dieser Effekte sollten systematische Untersuchungen folgen.

### **Ausblick: Verbesserung der Lateralauflösung**

Alle zu den hier präsentierten Ergebnissen gehörenden holographischen Kippserien wurden in einem Philips CM200FEG ST/LL Elektronenmikroskop im Lorentz-Modus aufgezeichnet. Die Benutzung der Lorentzlinse ist notwendig, damit die erforderliche Hologrammbreite für die Aufzeichnung der hier untersuchten, mehrere  $100\text{ nm}$  großen Nanostrukturen erreicht wird. Gleichzeitig beträgt jedoch die Auflösung der holographisch rekonstruierten Objektweite nur ca.  $(5 - 10)\text{ nm}$ . Diese Auflösung lässt sich schon heute (bei immer noch ausreichender Hologrammbreite von ca.  $300\text{ nm}$ ) in einem Cs-korrigierten Elektronenmikroskop auf etwa  $(1 - 3)\text{ nm}$  unterschreiten, indem die erste Transferlinse des Cs-Korrektor als Pseudo-Lorentzlinse verwendet wird [Snoeck et al. (2006)]. Dies ist seit kurzem

## 7. Zusammenfassung und Ausblick

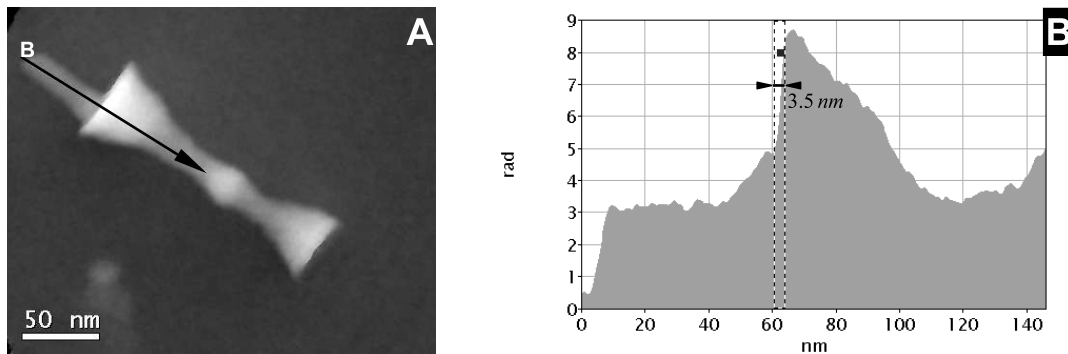


Abbildung 7.1.: Rekonstruierte Phase eines hantelförmigen Cobalt-Nanoteilchens. Das zugehörige Elektronenhologramm wurde an einem FEI Tecnai F20 Cs-corr bei Benutzung der ersten Transferlinse des Cs-Korrektors als Pseudo-Lorentzlinse aufgezeichnet. Die verbesserte Auflösung zeigt auch das Linienprofil (B). (Probe bereitgestellt vom CEMES-Labor, Toulouse, Frankreich)

auch mit dem “FEI Tecnai F20 Cs-corr” des Triebenbergs-Labors möglich (Abb. 7.1) [Linck et al. (2010)].

In diesem Zusammenhang stellt sich die Frage, ob die EHT auch bis in atomare Auflösung möglich ist. Erste Simulationsrechnungen am Beispiel eines  $(4\text{ nm})^3$  großen  $\text{BaTiO}_3$  Kubus<sup>3</sup>, d.h. die Berechnung einer Kippserie von Phasenbildern mittels Streusimulation und die Rekonstruktion des 3D-Potentials aus der Phasenkippsreihe mittels W-SIRT, zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, die Atompotentiale durch EHT zu rekonstruieren<sup>3</sup>. Die besten experimentellen Bedingungen dafür bietet derzeit das im Rahmen des TEAM-Projektes<sup>4</sup> entwickelte TEAM I - Elektronenmikroskop. Würde man dieses TEM, welches eine äußerst kohärente Elektronenquelle mit hohen Richtstrahlwert (XFEG), ein sub-nm-präzises, piezo-getriebenes Goniometer (piezo-stage), eine sehr stabile Säule, einen Cs- und Cc-Korrektor und einen extrem schnellen Detektor [Denes et al. (2007)] besitzt, mit einem elektrostatischen Biprisma ausstatten, so wäre man wahrscheinlich in der Lage, sich dieser Herausforderung zu stellen. Die Hauptprobleme, die es dabei zu lösen gilt, sind insbesondere:

- die dynamische Beugung<sup>5</sup>, welche sich auf atomarer Skala stärker als auf Nanometerskala auswirkt (z.B. Kontrastumkehr der abgebildeten Atomsäulen),
- das mit steigender Auflösung abnehmende SNR, sowie
- die höheren Strahlenschäden, welche sich auf atomarer Skala deutlicher als auf Nanometerskala zeigen.

<sup>3</sup>Diese Analyse wurde mit Falk Röder im Triebenbergs-Labor durchgeführt.

<sup>4</sup><http://ncem.lbl.gov/TEAM-project/>

<sup>5</sup>Dynamische Beugung verletzt die Projektionsbedingung für Tomographie.

## Ausblick: 3D-Rekonstruktion von Magnetischen Vektorfeldern

Gleichung (2.9) oder (2.7) bilden die Grundlage, mittels EHT magnetische Felder in 3D zu rekonstruieren. Jedoch stellt sich die 3D-Rekonstruktion des magnetischen (Vektor-)Feldes im Vergleich zur Rekonstruktion von 3D-Potentialen, sowohl experimentell als auch theoretisch aufwendiger und komplizierter dar [Dunin-Borkowski und Kasama (2004)]. Die experimentelle Herausforderung besteht vor allem darin, das weitaus geringere magnetische Phasensignal<sup>6</sup> vom dominierenden elektrostatischen zu trennen. Dazu müssen zwei Phasenverteilungen der identischen Objektstelle verfügbar sein, in denen jeweils der magnetische Beitrag zur Phasenschiebung entweder durch 180°-Drehung der TEM-Probe um eine Achse in der Probenebene [Tonomura et al. (1986)] oder durch Ummagnetisierung mittels der Objektivlinse [Dunin-Borkowski et al. (1998)] das Vorzeichen wechselt. Bei Bildung der Differenz beider Verteilungen bleibt nur die magnetische Phasenschiebung übrig. Da diese, wie oben erwähnt, kleiner ist als die elektrostatische Phasenschiebung, ist der relative Einfluss von Rauschens und dynamischer Effekte auf das magnetische Phasensignal deutlich störender. Zudem lässt sich aus einer Kippserie nur die  $B$ -Feld-Komponente parallel der Kippachse rekonstruieren, da die anderen beiden Komponenten sich bei Kippwinkeln ungleich Null in der Projektion überlagern. Somit benötigt man für die zweite in der Probenebene liegende Komponente noch eine um 90° zur ersten rotierte Kippserie, so dass insgesamt vier Kippserien als Datenbasis für die 3D-Rekonstruktion des  $B$ -Feldes erforderlich sind. Da die Phase nach Gl. (2.9) die Integrale der  $B$ -Feldkomponenten entlang  $y$ - und  $x$ -Richtung enthält, sind erst ihre Ableitungen proportional zu den projizierten Komponenten  $B_x$  und  $B_y$ . Die numerische Auswertung der ersten Ableitungen verschlechtert nochmals das Signal-zu-Rausch Verhältnis der daraus resultierenden Verteilungen. Die eigentliche 3D-Rekonstruktion muss neben den beiden aufgezeichneten Komponenten  $B_x$  und  $B_y$  auch die  $B_z$  Komponente über die Maxwell-Gleichung  $\nabla \mathbf{B} = \mathbf{0}$  liefern. Es existieren bereits Algorithmen dafür, mithilfe des Vektorfeldes  $\mathbf{A}$  das gesamte dreidimensionale  $B$ -Feld zu rekonstruieren [Phatak et al. (2008); Lubk (2010)].

Bislang ist es jedoch noch nicht (auf wirklich quantitative Weise) gelungen, Experiment und Theorie für die Messung von 3D-Magnetfeldern zusammenzuführen. Die bereits erschienenen Artikel von Lai et al. (1994a) und Stolojan et al. (2001) zeigen zwar, dass es prinzipiell möglich ist, dieses Ziel zu erreichen, jedoch waren die dort erzielten Ergebnisse nicht quantitativ. Auch die eigenen Anstrengungen führten bisher nur bis zur Rekonstruktion einer einzelnen Komponente des  $B$ -Feldes [Wolf et al. (2007)]. Dennoch gibt es begründete Hoffnung, dass in naher Zukunft die 3D-Analyse von magnetischen Vektorfeldern, zumindest bei einigen dafür geeigneten Proben, realisiert wird.

---

<sup>6</sup>Für eine Fe-Einheitszelle lässt sich eine elektrische Phasenschiebung  $\varphi_{el} = C_E V_0 a = 0.06 \text{ rad}$  mit  $V_0 = 29 \text{ V}$  und  $a = 0.287 \text{ nm}$  abschätzen. Dagegen liefert die Abschätzung der magnetischen Phasenschiebung  $\varphi_{mag} = (e/\hbar) \mu_0 \mu_B n_B n_{atoms} n_{uc} / a = 2.7 \cdot 10^{-4} \text{ rad}$  mit  $n_B = 2.2$ , der Anzahl der Bohrschen Magnetons pro Eisenatom (weitere Details. s. Lichte (2008)). Damit ist  $\varphi_{el}/\varphi_{mag} \approx 200$ .

## *7. Zusammenfassung und Ausblick*



# A. Anhang

## A.1. Näherung der Klein-Gordon Gleichung

Zur Berechnung der dreidimensionalen Wellenfunktion eines Elektrons  $\psi(\mathbf{r})$  im elektrostatischen Potential  $V$  des abzubildenden Objektes dient die Klein-Gordon Gleichung

$$(E - V)^2 \psi(\mathbf{r}) = (\hat{p}^2 c^2 + m_0^2 c^4) \psi(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

als Bewegungsgleichung Lubk (2010). Darin ist  $\hat{p}$  der Impulsoperator,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $m_0$  die Ruhemasse des Elektrons. Das Ausmultiplizieren der Klammer auf der linken Seite ergibt

$$(E^2 - 2EV + V^2) \psi(\mathbf{r}) = (\hat{p}^2 c^2 + m_0^2 c^4) \psi(\mathbf{r}). \quad (\text{A.2})$$

Nach Vernachlässigen des sehr kleinen  $V^2$  Terms ( $E \gg V$ ) in der ersten Klammer und umsortieren der Energieterme auf beiden Seiten ergibt sich

$$(E^2 - m_0^2 c^4) \psi(\mathbf{r}) = (\hat{p}^2 c^2 + 2EV) \psi(\mathbf{r}). \quad (\text{A.3})$$

Die Division durch  $2E = 2\gamma m_0 c^2$  liefert

$$\left( \frac{E^2 - m_0^2 c^4}{2\gamma m_0 c^2} \right) \psi(\mathbf{r}) = \left( \frac{\hat{p}^2}{2\gamma m_0} + V \right) \psi(\mathbf{r}). \quad (\text{A.4})$$

Fasst man die Klammer links zusammen zu

$$E^* = \left( \frac{E^2 - m_0^2 c^4}{2\gamma m_0 c^2} \right), \quad (\text{A.5})$$

so erhält man schließlich eine Gleichung, die eine der Schrödingergleichung ähnliche Form

$$\left[ \frac{\hat{p}^2}{2\gamma m_0} + V(x, y, z) - E^* \right] \psi(\mathbf{r}) = 0. \quad (\text{A.6})$$

Sie wird in diesem Zusammenhang genäherte Klein-Gordon-Gleichung genannt und dient als Grundgleichung zur Beschreibung der Elektronenstreuung im TEM.

## A.2. Herleitung der Phase-Grating Approximation

Die in A.1 genäherte Klein-Gordon Gleichung (KGG) kann mithilfe der WKB Näherung weiter approximiert werden, einem bekannten Ansatz zur Lösung der Schrödinger-Gleichung. WKB steht für die Namen Wentzel, Kramers Brillouin. Die WKB-Näherung soll für die  $z$ -Koordinate durchgeführt werden. Daher wird die Wellenfunktion zunächst in eine Wellenfunktion  $\psi_{in}(x, y)$ , die in der Objektebene (in-plane) liegt, und eine Wellenfunktion  $\psi_{out}(z)$ , die senkrecht zur Objektebene (out-of-plane) liegt, separiert:

$$\psi(x, y, z) = \psi_{in}(x, y) \psi_{out}(z) = \psi_{in}(x, y) \exp(iS(z)). \quad (\text{A.7})$$

Das Phasen-Inkrement  $S(z)$  wird als Reihenentwicklung

$$S(z) = S_0(z) + iS_1(z) + \dots \quad (\text{A.8})$$

geschrieben. Dessen erstes Glied ist Lösung der Gl. A.6 bzgl.  $z$ , wenn

$$S_0(z) = \frac{1}{\hbar} \int_{z_0}^z p(x, y, z') dz' = \frac{1}{\hbar} \int_{z_0}^z \sqrt{2\gamma m_0 (E^* - V(x, y, z'))} dz' \quad (\text{A.9})$$

ist. Setzt man für  $E^*$  die Beziehung A.5 ein, so erhält man für den Wurzelterm nach weiterer Umformung

$$\sqrt{2\gamma m_0 (E^* - V(x, y, z'))} = \sqrt{2\gamma m_0} \sqrt{\frac{\hbar^2 k^2}{2\gamma m_0} \sqrt{1 - \frac{V(x, y, z')}{E^*}}}. \quad (\text{A.10})$$

$$= \hbar k \left( 1 - \frac{V}{2E^*} \right) \quad (\text{A.11})$$

$$= \hbar k - \frac{\hbar k}{2E^*} V \quad (\text{A.12})$$

In der zweiten Zeile wurde mithilfe der Taylor-Entwicklung der Wurzel für kleine  $x$  aus  $\sqrt{1-x} = 1 - 1/2x$  ( $V \ll E^*$ ). Ersetzt man dieses Ergebnis mit der Klammer in A.9, so erhält man für das Phaseninkrement mit  $E^*$  laut Gl. A.5

$$S_0(z) = k(z - z_0) - \frac{\gamma m_0}{\hbar^2 k} \int_{z_0}^z V(x, y, z') dz' \quad (\text{A.13})$$

$$= \varphi_0 - C_E \int_{z_0}^z V(x, y, z') dz' \quad (\text{A.14})$$

In der Elektronenholographie entsprechen erster und zweiter Term jeweils den Phasenschiebungen von Referenz- und Objektwelle,  $\varphi_0$  und  $\varphi_{obj}$ . Da man während

der holographischen Rekonstruktion die Phase  $\varphi_0$  subtrahiert, hat man somit die bekannte Form für die Objektphase vorliegen. Die Konstante

$$C_E [\text{rad}/eVm] = \frac{\gamma m_0}{\hbar^2 k} \quad (\text{A.15})$$

$$C_E [\text{rad}/Vm] = \frac{2\pi\gamma m_0 e\lambda}{h^2} \quad (\text{A.16})$$

vor dem Integral wird Interaktionskonstante genannt.

### A.3. Elongationsfaktor

Der Herleitung von Radermacher (1980) folgend, soll der Elongationsfaktor aufgrund des Missing Wedges für Ein-Achsen-Tomographie ermittelt werden. Dazu wird zunächst die zweidimensionale Verschmierung  $f(x, z)^1$  des Bildpunktes  $(0, 0)$  in der  $x, z$ -Ebene (Kippachse  $\parallel y$ ) durch Taylor-Entwicklung bis zur 2.Ordnung genähert, d.h.

$$f(x, z) = f(0, 0) + \frac{1}{2}f_{xx}(0, 0)x^2 + \frac{1}{2}f_{zz}(0, 0)z^2 + \mathcal{O}(x^4) + \mathcal{O}(z^4) + \dots \quad (\text{A.17})$$

Aus Symmetriegründen bleiben dabei nur die quadratischen Terme in  $x$  und  $z$  mit den zweiten Ableitungen (Krümmungen)  $f_{xx}(0, 0)$  und  $f_{zz}(0, 0)$  als Vorfaktor übrig, wobei

$$f_{uu}(0, 0) = \left. \frac{\partial^2 f}{\partial^2 u} \right|_{(x,z)=(0,0)} \quad (\text{A.18})$$

bedeutet.

Der Elongationsfaktor  $e_{xz}$  wird durch das Verhältnis der beiden Nullstellen  $z_0$  und  $x_0$  definiert, für welche jeweils  $f(x_0, 0) = 0$  und  $f(0, z_0) = 0$  gilt. Dessen Berechnung für die obige Relation A.17 ergibt

$$e_{xz} := \frac{z_0}{x_0} = \sqrt{\frac{f_{xx}(0, 0)}{f_{zz}(0, 0)}} \quad (\text{A.19})$$

Zur Bestimmung der beiden Ableitungen wird die Identität im Fourieraum

$$\left. \frac{\partial^n f(x, z)}{\partial u^n} \right|_{(x,z)=(0,0)} = i^n 2\pi^n \int g_u^n F(g_x, g_z) d^2 g \quad (\text{A.20})$$

für die  $n$ -te Ableitung nach der Komponente  $u$  ausgenutzt. Darin sei außerdem  $F(g_x, g_z)$  die Fouriertransformierte von  $f(x, z)$  und  $g_u$  die reziproke Koordinate zur

---

<sup>1</sup>Bei Radermacher (1980) wurde die Herleitung für den dreidimensionalen Fall durchgeführt.

Komponente  $u$ .

Wenn man  $g_x = g \cos(\alpha)$  und  $g_z = g \sin(\alpha)$  durch die Polarkoordinaten  $g$  und  $\alpha$  ersetzt, dann kann bei der Integration im Fourierraum der Missing Wedge berücksichtigt werden, indem die maximalen Kippwinkel  $\pm\alpha_0$  und die wegen der begrenzten Auflösung maximale Raumfrequenz  $g_{max}$  als Integralschranken zur Berechnung von

$$f_{xx}(0,0) = -4(2\pi)^2 \int_0^{g_{max}} \int_{-\alpha_0}^{+\alpha_0} g^2 \cos^2(\alpha) g dg d\alpha \quad (\text{A.21})$$

eingesetzt werden. Das Ergebnis der Integration lautet

$$f_{xx}(0,0) = -(2\pi)^2 g_{max}^4 (\alpha_0 + \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0)). \quad (\text{A.22})$$

Die Berechnung von  $f_{zz}(\mathbf{0})$  verläuft bis auf den einzigen Unterschied, dass statt  $\cos^2(\alpha) \sin^2(\alpha)$  im Integranden steht, identisch ab, und führt zu den Ausdruck

$$f_{zz}(0,0) = -(2\pi)^2 g_{max}^4 (\alpha_0 - \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0)). \quad (\text{A.23})$$

Setzt man die beiden partiellen Ableitungen in Gl. A.19 ein, so erhält man den Elongationsfaktor in der bekannten Form

$$e_{xz} = \sqrt{\frac{(\alpha_0 + \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0))}{(\alpha_0 - \sin(\alpha_0) \cos(\alpha_0))}}. \quad (\text{A.24})$$

# Literaturverzeichnis

- Pascual Abellán und Dani Tost. Multimodal volume rendering with 3D textures. *Computers & Graphics*, 32(4):412–419, 2008. 69
- M.A. Aronova, Y.C. Kim, R. Harmon, A.A. Sousa, G. Zhang, und R.D. Leapman. Three-dimensional elemental mapping of phosphorus by quantitative electron spectroscopic tomography (QuEST). *Journal of Structural Biology*, 160(1):35–48, 2007. 53
- S. Bals, G. Van Tendeloo, und C. Kisielowski. A New Approach for Electron Tomography: Annular Dark-Field Transmission Electron Microscopy. *Advanced Materials*, 18:892–295, 2006. 53
- J. S. Barnard, J. Sharp, J. R. Tong, und P. A. Midgley. High-Resolution Three-Dimensional Imaging of Dislocations. *Science*, 313(5785):319–, 2006. 53
- Bastian Barton, Friederike Joos, und Rasmus R. Schröder. Improved specimen reconstruction by Hilbert phase contrast tomography. *Journal of Structural Biology*, 164(2):210–220, 2008. 52
- R. Beanland, A.M. Sánchez, J.C. Hernandez-Garrido, D. Wolf, und P.A. Midgley. Electron tomography of III-V quantum dots using dark field 002 imaging conditions. *Journal of Microscopy*, 237(2):148–154, 2010. 53
- J. Berriman, R.K. Bryan, R. Freeman, und K.R. Leonard. Methods for specimen thickness determination in electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 13(4):351–364, 1984. 68
- H Bethe. Theory on the diffraction of electrons in crystals. *Annalen der Physik*, 87(17):55–129, 1928. 10
- Max Born und Emil Wolf. In Max Born und Emil Wolf, editors, *Principles of Optics*. New York: Pergamon Press, 1980. 20
- R.N. Bracewell und A.C. Riddle. Inversion of fan beam scans in radio astronomy. *Astrophys. J.*, 150:427–434, 1967. 53, 59
- S. S. Brandt und U. Ziese. Automatic TEM image alignment by trifocal geometry. *Journal of Microscopy*, 222(1):1–14, 2006. 68
- Sami Brandt, Jukka Heikkonen, und Peter Engelhardt. Automatic Alignment of Transmission Electron Microscope Tilt Series without Fiducial Markers. *Journal of Structural Biology*, 136(3):201–213, 2001. 68

- Sami S. Brandt. *Markerless alignment in electron tomography*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 68
- Jose-Maria Carazo. *The fidelity of 3D reconstructions from incomplete data and the use of restoration methods*, In J. Frank, editor, *Electron tomography: Three-Dimensional Imaging with the Transmission Electron Microscope*. Plenum, New York, 1992. 61
- Jose-Maria Carazo, Gabor T. Herman, und Carlos O.S. Sorzano. *Algorithms for Three-dimensional Reconstruction From the Imperfect Projection Data Provided by Electron Microscopy*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 54
- W.M.J. Coene, A. Thust, M. Op de Beeck, und D. Van Dyck. Maximum-likelihood method for focus-variation image reconstruction in high resolution transmission electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 64(1-4):109–135, 1996. 25, 66
- A. M. Cormack. Representation of a Function by Its Line Integrals, with Some Radiological Applications. *J. Appl. Phys.*, 34(9):2722–2727, 1963. 45
- A. M. Cormack. Representation of a Function by Its Line Integrals, with Some Radiological Applications. II. *J. Appl. Phys.*, 35(10):2908–2913, 1964. 45
- J. M. Cowley und A. F. Moodie. The scattering of electrons by atoms and crystals. I. A new theoretical approach. *Acta Crystallographica Section A*, 10(10):609–619, 1957. 12
- J.M. Cowley. Twenty forms of electron holography. *Ultramicroscopy*, 41(4):335–348, 1992. 25
- R. A. Crowther, Linda A. Amos, J. T. Finch, D. J. De Rosier, und A. Klug. Three Dimensional Reconstructions of Spherical Viruses by Fourier Synthesis from Electron Micrographs. *Nature*, 226(5244):421–425, 1970a. 59
- R. A. Crowther, D. J. DeRosier, und A. Klug. The Reconstruction of a Three-DimensionStructure from Projections and its Application to Electron Microscopy. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, 317:319–340, 1970b. 53
- Radostin Danev, Shuji Kanamaru, Michael Marko, und Kuniaki Nagayama. Zernike phase contrast cryo-electron tomography. *Journal of Structural Biology*, 171(2):174–181, 2010. 52
- D. J. De Rosier und A. Klug. Reconstruction of Three Dimensional Structures from Electron Micrographs. *Nature*, 217(5124):130–134, 1968. 45, 53

- S.R. Deans. *The Radon Transform and Some of its Applications*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1983. 54
- P. Denes, J.-M. Bussat, Z. Lee, und V. Radmilovic. Active Pixel Sensors for electron microscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 579(2):891–894, 2007. 154
- Joachim Dengler. A multi-resolution approach to the 3D reconstruction from an electron microscope tilt series solving the alignment problem without gold particles. *Ultramicroscopy*, 30(3):337–348, 1989. 68, 69
- K. Dierksen, D. Typke, R. Hegerl, A.J.Koster, und W. Baumeister. Towards automatic electron tomography. *Ultramicroscopy*, 40:71–97, 1992. 64
- K. Dierksen, D. Typke, R. Hegerl, und W. Baumeister. Towards automatic electron tomography II. Implementation of autofocus and low-dose procedures. *Ultramicroscopy*, 49(1-4):109–120, 1993. 64
- P. A. Doyle und P. S. Turner. Relativistic Hartree-Fock X-ray and electron scattering factors. *Acta Crystallographica Section A*, 24:390, 1968. 10
- Robert A. Drebin, Loren Carpenter, und Pat Hanrahan. Volume rendering. In *Proceedings of the 15th annual conference on Computer graphics and interactive techniques*, pages 65–74. ACM, 1988. 69
- Xiangfeng Duan, Yu Huang, Yi Cui, Jianfang Wang, und Charles M. Lieber. Indium phosphide nanowires as building blocks for nanoscale electronic and optoelectronic devices. *Nature*, 409(6816):66–69, 2001. 140
- Xiangfeng Duan, Yu Huang, Ritesh Agarwal, und Charles M. Lieber. Single-nanowire electrically driven lasers. *Nature*, 421(6920):241–245, 2003. 140
- R. E. Dunin-Borkowski und T. Kasama. The Prospect of Three-Dimensional Induction Mapping Inside Magnetic Nanostructures by Combining Electron Holography with Electron Tomography. *Microsc. Microanal.* 10(Suppl 2), 10: 1010–1011, 2004. 155
- R. E. Dunin-Borkowski, M. R. McCartney, David J. Smith, und S. S. P. Parkin. Towards quantitative electron holography of magnetic thin films using in situ magnetization reversal. *Ultramicroscopy*, 74(1-2):61–73, 1998. 155
- E.A. Fischione Instruments, Inc., 9003 Corporate Circle, US. Model 2050 On-Axis Rotation Tomography Holder. 2006. 119
- FEI company, Eindhoven, Netherlands. Explore3D/Inspect3D software. 65

- José-Jesús Fernández und Sam Li. An improved algorithm for anisotropic nonlinear diffusion for denoising cryo-tomograms. *Journal of Structural Biology*, 144(1-2): 152–161, 2003. 70
- José-Jesús Fernández, Albert F. Lawrence, Javier Roca, Inmaculada García, Mark H. Ellisman, und José-María Carazo. High-performance electron tomography of complex biological specimens. *Journal of Structural Biology*, 138(1-2):6–20, 2002. 54
- Thomas J. Flynn. Two-dimensional phase unwrapping with minimum weighted discontinuity. *J. Opt. Soc. Am. A*, 14(10):2692–2701, 1997. 37, 40, 42
- Eberhard Formanek, Petr Bugiel. On specimen tilt for electron holography of semiconductor devices. *Ultramicroscopy*, 106:292–300, 2006. 134
- Achilleas S. Frangakis und Reiner Hegerl. Noise Reduction in Electron Tomographic Reconstructions Using Nonlinear Anisotropic Diffusion. *Journal of Structural Biology*, 135(3):239–250, 2001. 70
- J. Frank. The Envelope of Electron Microscopic Transfer Functions for Partially Coherent Illumination. *Optik*, 38:519–536, 1973. 20
- J. Frank und B. F. McEwen. *Alignment by Cross-Correlation*, In J. Frank, editor, *Electron tomography*. Plenum, New York, 1992. 66
- J. Frank, B. F. McEwen, M. Radermacher, J. N. Turner, und C. L. Rieder. Three-dimensional tomographic reconstruction in high voltage electron microscopy. *Journal of Electron Microscopy Technique*, 6(2):193–205, 1987. 66
- Joachim Frank. *Introduction: Principles of Electron Tomography*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 59
- F.J. Franke, K.-H. Herrmann, und H. Lichte. Numerical reconstruction of the electron object wave from an electron hologram including the correction of aberrations. *Scanning Microscopy Supplement*, 2:59–67, 1988. 29
- H. Friedrich, M. R. McCartney, und P. R. Buseck. Electron Holographic Tomography - Challenge and Opportunity. *Microsc Microanal 10(Suppl 2)*, 10:1174–1175, 2004. 75
- H. Friedrich, M.R. McCartney, und P.R. Buseck. Comparison of intensity distributions in tomograms from BF TEM, ADF STEM, HAADF STEM, and calculated tilt series. *Ultramicroscopy*, 106(1):18–27, 2005. 57
- Heiner Friedrich, Petra E. de Jongh, Arie J. Verkleij, und Krijn P. de Jong. Electron Tomography for Heterogeneous Catalysts and Related Nanostructured Materials. *Chemical Reviews*, 109(5):1613–1629, 2009. 52, 63



- Jennifer C. Fung, Weiping Liu, W. J. de Ruijter, Hans Chen, Craig K. Abbey, John W. Sedat, und David A. Agard. Toward Fully Automated High-Resolution Electron Tomography. *Journal of Structural Biology*, 116(1):181–189, 1996. 65
- D. Gabor. A new microscopic principle. *Nature*, 161:777–778, 1948. 25
- D. Gabor. Microscopy by Reconstructed Wave-Fronts. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, 197(1051):454–487, 1949. 25
- M Gajdardziska-Josifovska und M. R. McCartney. Elimination of thickness dependence from medium resolution electron holograms. *Ultramicroscopy*, 53: 291–296, 1994. 15
- M. Gajdardziska-Josifovska, M. R. McCartney, W. J. Ruijter, D. J. de Smith, J. K. Weiss, und J. M. Zuo. Accurate measurements of mean inner potential of crystal wedges using digital electron holograms. *Ultramicroscopy*, 50:285–299, 1993. 34
- Gatan Inc., Pleasanton, U.S. 3D Tomography-Acquisition Software. 1996–2009. 65
- Dorin Geiger, Hannes Lichte, Martin Linck, und Michael Lehmann. Electron Holography with a Cs-Corrected Transmission Electron Microscope. *Microscopy and Microanalysis*, 14(01):68–81, 2008. 26
- Dennis C. Ghiglia und Mark D. Pritt. *Two-Dimensional Phase Unwrapping*, In *Two-Dimensional Phase Unwrapping*. John Wiley & Sons, New York, 1998. 37, 38, 42
- Peter Gilbert. Iterative methods for the three-dimensional reconstruction of an object from projections. *Journal of Theoretical Biology*, 36(1):105–117, 1972a. 53, 56, 57, 58
- P.F.C. Gilbert. The reconstruction of a three-dimensional structure from projections and its application to electron microscopy. II: Direct methods. *Proc. R. Soc. Lond. B.*, 182:89–102, 1972b. 54
- R M Glaeser. Electron Crystallography of Biological Macromolecules. *Annual Review of Physical Chemistry*, 36(1):243–275, 1985. 51, 52
- R. Goldstein, H. Zebker, und C. Werner. Satellite radar interferometry: Two-dimensional phase unwrapping. *Radio Science*, 23:713–720, 1988. 37, 38
- Richard Gordon, Robert Bender, und Gabor T. Herman. Algebraic Reconstruction Techniques (ART) for three-dimensional electron microscopy and X-ray photography. *Journal of Theoretical Biology*, 29(3):471–481, 1970. 53, 56
- R. Guckenberger. Determination of a common origin in the micrographs of tilt series in three-dimensional electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 9(1-2):167–173, 1982. 66, 68

- Max. Haider, Harald Rose, Stephan Uhlemann, Eugen Schwan, Bernd Kabius, und Knut Urban. A spherical-aberration-corrected 200 kV transmission electron microscope. *Ultramicroscopy*, 75(1):53–60, 1998. 26
- G. Harauz und M. van Heel. Exact filters for general geometry three dimensional reconstruction. *Optik*, 73:146–156, 1986. 56
- Roger G. Hart. Electron Microscopy of Unstained Biological Material: The Polytopic Montage. *Science*, 159(3822):1464–1467, 1968. 45
- Satoshi Hata, Kosuke Kimura, Hongye Gao, Syo Matsumura, Minoru Doi, Tomokazu Moritani, Jonathan S. Barnard, Jenna R. Tong, Jo H. Sharp, und Paul A. Midgley. Electron Tomography Imaging and Analysis of  $\gamma'$  and  $\gamma$  Domains in Ni-based Superalloys. *Advanced Materials*, 20(10):1905–1909, 2008. 53
- Peter W. Hawkes. *The Electron Microscope as a Structure Projector*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 51, 52
- W. Hoppe. Das Endlichkeitspostulat und das Interpolationstheorem der dreidimensionalen elektronenmikroskopischen Analyse aperiodischer Strukturen. *Optik*, 29:617–621, 1969. 45
- W. Hoppe, R. Langer, G. Knesch, und Ch. Poppe. Protein-Kristallstrukturanalyse mit Elektronenstrahlen. *Naturwissenschaften*, 55(7):333–336, 1968. 45
- A. Howie und M. J. Whelan. Diffraction Contrast of Electron Microscope Images of Crystal Lattice Defects. II. The Development of a Dynamical Theory. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 263(1313):217–237, 1961. 12
- J. A. Ibers. Atomic scattering amplitudes for electrons. *Acta Crystallographica Section A*, 11:178, 1958. 10
- Kazuo Ishizuka. Contrast transfer of crystal images in TEM. *Ultramicroscopy*, 5(1-3):55–65, 1980. 20
- Kazuyoshi Itoh. Analysis of the phase unwrapping algorithm. *Appl. Opt.*, 21(14):2470–2470, 1982. 38
- Xiaocheng Jiang, Qihua Xiong, Sungwoo Nam, Fang Qian, Yat Li, und Charles M. Lieber. InAs/InP Radial Nanowire Heterostructures as High Electron Mobility Devices. *Nano Letters*, 7(10):3214–3218, 2007. 142
- Zhongqi Jing und Frederick Sachs. Alignment of tomographic projections using an incomplete set of fiducial markers. *Ultramicroscopy*, 35(1):37–43, 1991. 68

- Hiroshi Jinnai und Richard J. Spontak. Transmission electron microtomography in polymer research. *Polymer*, 50(5):1067–1087, 2009. 52
- Jonas Johansson, Lisa S. Karlsson, C. Patrik T. Svensson, Thomas Martensson, Brent A. Wacaser, Knut Deppert, Lars Samuelson, und Werner Seifert. Structural properties of  $\langle 111 \rangle$ B -oriented III-V nanowires. *Nat Mater*, 5(7):574–580, 2006. 142, 143
- Jonas Johansson, Lisa S. Karlsson, C. Patrik T. Svensson, Thomas Mårtensson, Brent A. Wacaser, Knut Deppert, Lars Samuelson, und Werner Seifert. The structure of  $\langle 111 \rangle$ B oriented GaP nanowires. *Journal of Crystal Growth*, 298: 635–639, 2007. 142
- Noboru Kawase, Mitsuro Kato, Hideo Nishioka, und Hiroshi Jinnai. Transmission electron microtomography without the "missing wedge" for quantitative structural analysis. *Ultramicroscopy*, 107(1):8–15, 2007. 119, 135
- P. M. Kelly, A. Jostons, R. G. Blake, und J. G. Napier. The determination of foil thickness by scanning transmission electron microscopy. *physica status solidi (a)*, 31:771–780, 1975. 34
- M. Y. Kim, J. M. Zuo, und J.C.H. Spence. Ab-initio LDA Calculations of the Mean Coulomb Potential  $V_0$  in Slabs of Crystalline Si, Ge and MgO. *prsa*, 166(1): 445–451, 1998. 11, 138, 139, 147
- A.I. Kirkland, W.O. Saxton, K.-L. Chau, K. Tsuno, und M. Kawasaki. Super-resolution by aperture synthesis: tilt series reconstruction in CTEM. *Ultramicroscopy*, 57(4):355–374, 1995. 25
- Earl Kirkland, editor. In Earl Kirkland, editor, *Advanced Computing in Electron Microscopy*. Plenum Press, New York, 1998. 10, 12
- Christoph T. Koch. A flux-preserving non-linear inline holography reconstruction algorithm for partially coherent electrons. *Ultramicroscopy*, 108(2):141–150, 2008. 66
- Christoph T. Koch und Axel Lubk. Off-axis and inline electron holography: A quantitative comparison. *Ultramicroscopy*, 110(5):460–471, 2010. 25
- A. J. Koster und M. Barcena. *Cryotomography: Low-dose Automated Tomography of Frozen-hydrated Specimens*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 64
- A. J. Koster und W. J. de Ruijter. Practical autoalignment of transmission electron microscopes. *Ultramicroscopy*, 40(2):89–107, 1992. 64
- A. J. Koster, A. Van den Bos, und K. D. van der Mast. An autofocus method for a TEM. *Ultramicroscopy*, 21(3):209–222, 1987. 63, 84

- A. J. Koster, H. Chen, J. W. Sedat, und D. A. Agard. Automated microscopy for electron tomography. *Ultramicroscopy*, 46(1-4):207–227, 1992. 64
- A. J. Koster, R. Grimm, D. Typke, R. Hegerl, A. Stoschek, J. Waltz, und W. Baumeister. Perspective of Molecular and Cellular Electron Tomography. *Journal of Structural Biology*, 120:276–308, 1997. 64
- A. J. Koster, U. Ziese, A. J. Verkleij, A. H. Janssen, und K. P. de Jong. Three-Dimensional Transmission Electron Microscopy: A Novel Imaging and Characterization Technique with Nanometer Scale Resolution for Materials Science. *The Journal of Physical Chemistry B*, 104(40):9368–9370, 2000. 52
- Leigang Kou und Jianwen Chen. Eliminating the Influence of the Perturbed Reference Wave in Electron Holography. *Journal of Modern Optics*, 42(6): 1171–1178, 1995. 80
- James R. Kremer, David N. Mastronarde, und J. Richard McIntosh. Computer Visualization of Three-Dimensional Image Data Using IMOD. *Journal of Structural Biology*, 116(1):71–76, 1996. 68
- P. Kruse, A. Rosenauer, und D. Gerthsen. Determination of the mean inner potential in III-V semiconductors by electron holography. *Ultramicroscopy*, 96(1):11–16, 2003. 144
- P. Kruse, M. Schowalter, D. Lamoen, A. Rosenauer, und D. Gerthsen. Determination of the mean inner potential in III-V semiconductors, Si and Ge by density functional theory and electron holography. *Ultramicroscopy*, 106(2):105–113, 2006. 11, 34, 140, 143, 147
- A. Kuba und G. T. Herman. *Some Mathematical Concepts for Tomographic Reconstructions*, In John Banhart, editor, *Advanced tomographic methods in materials research and engineering*. Oxford University Press, Oxford, 2008. 54
- Christian Kuebel, Andreas Voigt, Remco Schoenmakers, Max Otten, David Su, Tan-Chen Lee, Anna Carlsson, und John Bradley. Recent Advances in Electron Tomography: TEM and HAADF-STEM Tomography for Materials Science and Semiconductor Applications. *Microscopy and Microanalysis*, 11(05):378–400, 2005. 52, 63
- G. Lai, T. Hirayama, A. Fukuhara, K. Ishizuka, T. Tanji, und A. Tonomura. Three-dimensional reconstruction of of magnetic vector fields using electron-holographic interferometry. *Journal of Applied Physics*, 75:4593–4598, 1994a. 75, 155
- G. Lai, T. Hirayama, K. Ishizuka, und A. Tonomura. Three-dimensional reconstruction of electric-potential distribution in electron-holographic interferometry. *Journal of Applied Optics*, 33:829–833, 1994b. 75, 131

- Ernst Lamla. Zur Theorie der Elektronenbeugung bei Berücksichtigung von mehr als 2 Strahlen und zur Erklärung der Kikuchi-Enveloppen. I. *Annalen der Physik*, 424(1-2):178–189, 1938. 12
- M. C. Lawrence. Alignment of images for three-dimensional reconstruction of non-periodic objects. In *Proc. Electron Microsc. Soc. S. Afr.*, pages 19–20, 1983. 68
- Michael C. Lawrence. *Least-Squares Method of Alignment Using Marker*, In J. Frank, editor, *Electron tomography: Three-Dimensional Imaging with the Transmission Electron Microscope*. Plenum, New York, 1992. 68
- R. D. Leapman, E. Kocsis, G. Zhang, T. L. Talbot, und P. Laquerriere. Three-dimensional distributions of elements in biological samples by energy-filtered electron tomography. *Ultramicroscopy*, 100(1-2):115–125, 2004. 53
- Chang-Woo Lee, Yoichi Ikematsu, und Daisuke Shindo. Measurement of mean free paths for inelastic electron scattering of Si and SiO<sub>2</sub>. *Journal of Electron Microscopy*, 51(3):143–148, 2002. 35
- Michael Lehmann. *Eine schnelle alternative Methode zur Rekonstruktion von Bildebenen-Off-Axis Elektronenhologrammen*. Diplomarbeit, University of Tübingen, 1992. 93, 98
- Michael Lehmann. *Numerische Rekonstruktion der aberrationsfreien Objektwelle aus off-axis Elektronenhologrammen*. Dissertation, Universität Tübingen, 1997. 93
- Michael Lehmann und Hannes Lichte. Tutorial on Off-Axis Electron Holography. *Microscopy and Microanalysis*, 8(06):447–466, 2002. 26, 29
- A. Leith. *Computer Visualization of Volume Data in Electron Tomography*, In J. Frank, editor, *Electron tomography*. Plenum, New York, 1992. 69
- Emmett N. Leith und Juris Upatnieks. Reconstructed Wavefronts and Communication Theory. *J. Opt. Soc. Am.*, 52(10):1123–1128, 1962. 26
- Andreas Lenk. *Quantitative Messung von Dotiergebieten in FIB-präparierten Silizium-Halbleiterbauelementen mittels Elektronenholographie*. Dissertation, Technische Universität Dresden, 2008. 34, 134, 135, 140
- Andreas Lenk, Uwe Mühle, und Hannes Lichte. Impact of Focussed Ion Beam (FIB) preparation on the measurement of electrically active dopants in silicon semiconductors using electron holography. In *Proceedings of the 6th Microscopy Conference (Dreiländertagung) Davos, Switzerland*, page 36. 2005. 134, 135
- F. Lenz. Statistics of phase and contrast determination in electron holograms. *Optik*, 79:13–14, 1988. 33

- M. R. Dunin-Borkowski R. E. Smith David J. Li, Jing McCartney. Determination of mean inner potential of germanium using off-axis electron holography. *Acta Crystallographica Section A*, 55:652–658, 1999. 34
- M. R. Smith-D. J. Li, J. McCartney. Semiconductor dopant profiling by off-axis electron holography. *Ultramicroscopy*, 94:149–161, 2003. 34
- H. Lichte. Electron holography approaching atomic resolution. *Ultramicroscopy*, 20: 293–304, 1986. 26
- H. Lichte. Optimum Focus for taking electron holograms. *Ultramicroscopy*, 38: 13–22, 1991. 26
- Hannes Lichte. Performance limits of electron holography. *Ultramicroscopy*, 108(3): 256–262, 2008. 155
- Hannes Lichte, Dorin Geiger, Alexander Harscher, Eduard Heindl, Michael Lehmann, Dimitrios Malamidis, Alexander Orchowski, und Wolf-Dieter Rau. Artefacts in electron holography. *Ultramicroscopy*, 64(1-4):67–77, 1996. 91
- M Linck, J. Sickmann, Hartel P., und Müller H. New Possibilities for Off-axis Electron Holography by Hardware Aberration Correctors. *Microsc Microanal 16 (Suppl 2)*, 16:94–95, 2010. 154
- Martin Linck. *Off-axis Holografie im aberrationskorrigierten Transmissionselektronenmikroskop*. Dissertation, Technische Universität Dresden, 2010. 26
- J. Loos, E. Sourty, K. Lu, B. Freitag, D. Tang, und D. Wall. Electron Tomography on Micrometer-Thick Specimens with Nanometer Resolution. *Nano Letters*, 9(4): 1704–1708, 2009. 52
- Axel Lubk. *Quantitative off-axis Electron Holography and (multi-)ferroic interfaces*. Dissertation, Technische Universität Dresden, 2010. 11, 12, 14, 30, 36, 54, 93, 155, 157
- Axel Lubk, Daniel Wolf, und Hannes Lichte. The effect of dynamical scattering in off-axis holographic mean inner potential and inelastic mean free path measurements. *Ultramicroscopy*, 110(5):438–446, 2010. 10, 13, 15, 123, 144
- Vladan Lucic, Friedrich Foerster, und Wolfgang Baumeister. Structural studies by electron tomography: from cells to molecules. *Annual Review of Biochemistry*, 74 (1):833–865, 2005. 52
- P. K. Luther, M. C. Lawrence, und R. A. Crowther. A method for monitoring the collapse of plastic sections as a function of electron dose. *Ultramicroscopy*, 24(1): 7–18, 1988. 68

- David N. Mastronarde. Dual-Axis Tomography: An Approach with Alignment Methods That Preserve Resolution. *Journal of Structural Biology*, 120(3):343–352, 1997. 47
- David N. Mastronarde. Automated electron microscope tomography using robust prediction of specimen movements. *Journal of Structural Biology*, 152(1):36–51, 2005. 65, 76
- David N. Mastronarde. *Fiducial Marker and Hybrid Alignment Methods for Single- and Double-axis Tomography*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 68
- G. Matteucci, G. F. Missiroli, E. Nichelatti, A. Migliori, M. Vanzi, und G. Pozzi. Electron holography of long-range electric and magnetic fields. *Journal of Applied Physics*, 69:1835, 1991. 80
- Günter Möbus, Ron C. Doole, und Beverley J. Inkson. Spectroscopic electron tomography. *Ultramicroscopy*, 96(3-4):433–451, 2003. 53
- M. R. McCartney und M. Gajdardziska-Josifovska. Absolute measurement of normalized thickness,  $t/|\lambda|$ , from off-axis electron holography. *Ultramicroscopy*, 53(3):283–289, 1994. 15
- M. R. McCartney, M. A. Gribelyuk, Jing Li, P. Ronsheim, J. S. McMurray, und David J. Smith. Quantitative analysis of one-dimensional dopant profile by electron holography. *Appl. Phys. Lett.*, 80(17):3213–3215, 2002. 134
- Richard McIntosh, Daniela Nicastro, und David Mastronarde. New views of cells in 3D: an introduction to electron tomography. *Trends in Cell Biology*, 15(1):43–51, 2005. 52
- Rüdiger Meyer. *Rekonstruktion von Bildebenen-off-axis Elektronenhologrammen im Ortsraum*. Diplomarbeit, University of Tübingen, 1996. 98
- P. A. Midgley und M. Weyland. 3D electron microscopy in the physical sciences: the development of Z-contrast and EFTEM tomography. *Ultramicroscopy*, 96(3-4):413–431, 2003. 51, 52, 53, 57, 63, 105
- Paul A. Midgley und Rafal E. Dunin-Borkowski. Electron tomography and holography in materials science. *Nature Materials*, 8(4):271–280, 2009. 57
- Paul A. Midgley, Edmund P. W. Ward, Ana B. Hungria, und John Meurig Thomas. Nanotomography in the chemical, biological and materials sciences. *Chem. Soc. Rev.*, 36:1477–1494, 2007. 57
- G. Möllenstedt und H. Düker. Fresnelscher Interferenzversuch mit einem Biprisma für Elektronenwellen. *Naturwissenschaften*, 42(2):41–41, 1955. 26

- G. Möllenstedt und H. Düker. Beobachtungen und Messungen an Biprisma-Interferenzen mit Elektronenwellen. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, 145(3):377–397, 1956. 26
- E. Müller, D. Gerthsen, P. Bruckner, F. Scholz, Th. Gruber, und A. Waag. Probing the electrostatic potential of charged dislocations in n-GaN and n-ZnO epilayers by transmission electron holography. *Phys. Rev. B*, 73(24):245316–9, 2006. 34
- Stephan Nickell. *Elektronentomographische Abbildung eiseingebetteter prokaryotischer Zellen*. Dissertation, 2001. 52
- Stephan Nickell, Friedrich Förster, Alexandros Linaroudis, William Del Net, Florian Beck, Reiner Hegerl, Wolfgang Baumeister, und Jürgen M. Plitzko. TOM software toolbox: acquisition and analysis for electron tomography. *Journal of Structural Biology*, 149(3):227–234, 2005. 65, 84, 85
- M. O’Keeffe und J. C. H. Spence. On the average Coulomb potential and constraints on the electron density in crystals. *Acta Crystallographica Section A*, 50(1):33–45, 1994. 11
- J. Orloff, M. Utlaut, und L. Swanson. In Jon Orloff, editor, *High Resolution Focused Ion Beams*. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 2003. 135
- Pawel Penczek, Michael Marko, Karolyn Buttle, und Joachim Frank. Double-tilt electron tomography. *Ultramicroscopy*, 60(3):393–410, 1995. 47, 68
- Pawel A. Penczek. Three-dimensional spectral signal-to-noise ratio for a class of reconstruction algorithms. *Journal of Structural Biology*, 138(1-2):34–46, 2002. 60
- Pawel A. Penczek und Joachim Frank. *Resolution in Electron Tomography*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 60
- S.J. Pennycook. Z-contrast stem for materials science. *Ultramicroscopy*, 30(1-2): 58–69, 1989. 53
- Paul Perkes. Phase Unwrapping Plug-in for Digital Micrograph(TM). *Arizona State University (ASU)*, 2002. 37, 129
- P. Perona und J. Malik. Scale-space and edge detection using anisotropic diffusion. *Pattern Analysis and Machine Intelligence, IEEE Transactions*, 12(7):629–639, 1990. 70
- M. W. Phaneuf. Applications of focused ion beam microscopy to materials science specimens. *Micron*, 30(3):277–288, 1999. 135



- C. Phatak, M. Beleggia, und M. De Graef. Vector field electron tomography of magnetic materials: Theoreticdevelopment. *Ultramicroscopy*, 108(6):503–513, 2008. 155
- Philips. *Mechanics*, In Philips Electron Optics, editor, *Philips Manual PW6061; CM200 Series, Transmission Electron Microscopes*. Philips, first edition, 1993. 76, 78
- P. Prete, F. Marzo, P. Paiano, N. Lovergine, G. Salviati, L. Lazzarini, und T. Sekiguchi. Luminescence of GaAs/AlGaAs core-shell nanowires grown by MOVPE using tertiarybutylarsine. *Journal of Crystal Growth*, 310(23):5114–5118, 2008. 141, 142
- M. Radermacher und W. Hoppe. Properties of 3-D reconstruction from projections by conical tilting compared to single axis tilting. In *Proceedings of the Seventh European Congress*, pages 132–133, 1980. 63
- Michael Radermacher. *Dreidimensionale Rekonstruktion bei kegelförmiger Kippung im Elektronenmikroskop*. Dissertation, Technische Universität München, 1980. 63, 159
- Michael Radermacher. *Weighted Back-projection Methods*, In Joachim Frank, editor, *Electron Tomography, Methods for Three-Dimensional Visualization of Structures in the Cell*. Springer, Berlin, 2006. 49, 53, 56
- J. Radon. Über die Bestimmung von Funktionen durch ihre Integralwerte längs gewisser Mannigfaltigkeiten. *Ber. Verh. Sächs. Akad. Wiss. Leipzig, Math. Nat. kl.*, 69:262–277, 1917. 45
- B. K. Rath, M. Marko, M. Radermacher, und J. Frank. Low-Dose Automated Electron Tomography: A Recent Implementation. *Journal of Structural Biology*, 120(3):210–218, 1997. 64, 65
- W. D. Rau, H. Lichte, E. Völkl, und U. Weierstall. Real time reconstruction of electron-off-axis holograms recorded with a high pixel CCD camera. *Journal of Computer-Assisted Microscopy*, 3:51–63, 1991. 29
- W. D. Rau, P. Schwander, F. H. Baumann, W. Höppner, und A. Ourmazd. Two-Dimensional Mapping of the Electrostatic Potential in Transistors by Electron Holography. *Phys. Rev. Lett.*, 82(12):2614–2617, 1999. 34, 134
- W.D. Rau, P. Schwander, und A. Ourmazd. Two-Dimensional Mapping of pn Junctions by Electron Holography. *physica status solidi (b)*, 222(1):213–217, 2000. 34, 134
- Falk Röder, Axel Lubk, Hannes Lichte, Thomas Bredow, Wentao Yu, und Werner Mader. Long-range correlations in In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(ZnO)<sub>7</sub> investigated by DFT calculations and electron holography. *Ultramicroscopy*, 110(5):400–410, 2010. 11

Ludwig Reimer. *Transmission Electron Microscopy*. Springer-Verlag, Berlin, 1984. 9

Axel Rother, Thomas Gemming, und Hannes Lichte. The statistics of the thermal motion of the atoms during imaging process in transmission electron microscopy and related techniques. *Ultramicroscopy*, 109(2):139–146, 2009. 15

E. Ruska. *Untersuchung elektrostatischer Sammelvorrichtungen als Ersatz der magnetischen Konzentrierspulen beim Kathodenstrahloszillographen*. Diplomarbeit, Technische Hochschule Berlin, 1930. 9

J. C. Russ, editor. *The Image Processing Handbook*, In J. C. Russ, editor, *The Image Processing Handbook*. CRC Press, 1995. 67

John Russ. *The Image Processing Handbook*. CRC Press, Boca Raton, 2007. 29

O. Scherzer. The Theoretical Resolution Limit of the Electron Microscope. *J. Appl. Phys.*, 20(1):20–29, 1949. 22

AK Schmid, T Duden, E Olson, T Donchev, und I Petrov. In-column Piezo-Stages and Experimental Opportunities. *Microscopy and Microanalysis*, 13(SupplementS02):1158–1159, 2007. 88

M. Schowalter, A. Rosenauer, D. Lamoen, P. Kruse, und D. Gerthsen. Ab initio computation of the mean inner Coulomb potential of wurtzite-type semiconductors and gold. *Appl. Phys. Lett.*, 88(23):232108–3, 2006. 11

L. A. Shepp. Computerized Tomography and Nuclear Magnetic Resonance. *Journal of Computer Assisted Tomography*, 4:94–107, 1980. 70, 111

P R Smith, T M Peters, und R H T Bates. Image reconstruction from finite numbers of projections. *Journal of Physics A: Mathematical, Nuclear and General*, 6(3):361–382, 1973. 53

E. Snoeck, P. Hartel, H. Mueller, M. Haider, und P.C. Tiemeijer. Using a CEOS - objective lens corrector as a pseudo Lorentz lens in a Tecnai F20 TEM. In Hideki Ichinose und Takahisa Sasaki, editors, *Proceedings Of The Sixteenth International Microscopy Congress*, volume 2. Publication committee of IMC16, 2006. 33, 153

Richard J. Spontak, Michael C. Williams, und David A. Agard. Three-dimensional study of cylindrical morphology in a styrene-butadiene-styrene block copolymer. *Polymer*, 29(3):387–395, 1988. 52

V. Stolojan, R.E. Dunin-Borkowski, M. Weyland, und P.A. Midgley. Three-dimensional magnetic fields of nanoscale elements determined by electron-holographic tomography. *Inst. Phys. Conf. Ser.*, 168:243–246, 2001. 155

- Christian Suloway, James Pulokas, Denis Fellmann, Anchi Cheng, Francisco Guerra, Joel Quispe, Scott Stagg, Clinton S. Potter, und Bridget Carragher. Automated molecular microscopy: The new Leginon system. *Journal of Structural Biology*, 151(1):41–60, 2005. 65
- Christian Suloway, Jian Shi, Anchi Cheng, James Pulokas, Bridget Carragher, Clinton S. Potter, Shawn Q. Zheng, David A. Agard, und Grant J. Jensen. Fully automated, sequential tilt-series acquisition with Leginon. *Journal of Structural Biology*, 167(1):11–18, 2009. 65
- Simon Sze. In *Physics of Semiconductor Devices*. Wiley, New York, 1981. 137
- K. C. Tam und V. Perez-Mendez. Tomographical imaging with limited-angle input. *J. Opt. Soc. Am.*, 71(5):582–592, 1981a. 61
- K. C. Tam und V. Perez-Mendez. Limited Angle Three Dimensional Reconstructions Using Fourier Transform Iterations and Radon Transform Iterations. *Opt. Eng.*, 20:586, 1981b. 61
- Bozhi Tian, Xiaolin Zheng, Thomas J. Kempa, Ying Fang, Nanfang Yu, Guihua Yu, Jinlin Huang, und Charles M. Lieber. Coaxial silicon nanowires as solar cells and nanoelectronic power sources. *Nature*, 449(7164):885–889, 2007. 140
- L. V. Titova, Thang B. Hoang, H. E. Jackson, L. M. Smith, J. M. Yarrison-Rice, Y. Kim, H. J. Joyce, H. H. Tan, und C. Jagadish. Temperature dependence of photoluminescence from single core-shell GaAs–AlGaAs nanowires. *Appl. Phys. Lett.*, 89(17):173126, 2006. 142
- Akira Tonomura, Tsuyoshi Matsuda, Junji Endo, Tatsuo Arie, und Kazuhiro Mihama. Holographic interference electron microscopy for determining specimen magnetic structure and thickness distribution. *Phys. Rev. B*, 34(5):3397–3402, 1986. 155
- Chikashi Toyoshima und Nigel Unwin. Contrast transfer for frozen-hydrated specimens: Determination from pairs of defocused images. *Ultramicroscopy*, 25(4):279–291, 1988. 52
- TVIPS GmbH, Gauting, Germany. Tomography Package. 65
- Alison C. Twitchett, Rafal E. Dunin-Borkowski, Robert J. Hallifax, Ronald F. Broom, und Paul A. Midgley. Off-Axis Electron Holography of Unbiased and Reverse-Biased Focused Ion Beam Milled Si p-n Junctions. *Microscopy and Microanalysis*, 11(01):66–78, 2005. 34, 134
- Alison C. Twitchett-Harrison, Timothy J. V. Yates, Simon B. Newcomb, Rafal E. Dunin-Borkowski, und Paul A. Midgley. High-Resolution Three-Dimensional Mapping of Semiconductor Dopant Potentials. *Nano Letters*, 7(7):2020–2023, 2007. 75

- Alison C. Twitchett-Harrison, Rafal E. Dunin-Borkowski, und Paul A. Midgley. Mapping the electrical properties of semiconductor junctions - the electron holographic approach. *Scanning*, 30(4):299–309, 2008a. 75
- Alison C. Twitchett-Harrison, Timothy J.V. Yates, Rafal E. Dunin-Borkowski, und Paul A. Midgley. Quantitative electron holographic tomography for the 3D characterisation of semiconductor device structures. *Ultramicroscopy*, 108(11):1401–1407, 2008b. 75, 134
- Jayaram Udupa, Hsiu-Mei Hung, und Keh-Shih Chuang. Surface and volume rendering in three-dimensional imaging: A comparison. *Journal of Digital Imaging*, 4(3):159–168, 1991. 69
- Stephan Uhlemann und Maximilian Haider. Residual wave aberrations in the first spherical aberration corrected transmission electron microscope. *Ultramicroscopy*, 72(3-4):109–119, 1998. 17
- M. Unser, C.O.S. Sorzano, P. Thévenaz, S. Jonic, C. El-Bez, S. De Carlo, J.F. Conway, und B.L. Trus. Spectral signal-to-noise ratio and resolution assessment of 3D reconstructions. *Journal of Structural Biology*, 149(3):243–255, 2005. 60
- Michael Unser, Benes L. Trus, und Alasdair C. Steven. A new resolution criterion based on spectral signal-to-noise ratios. *Ultramicroscopy*, 23(1):39–51, 1987. 60
- B.K. Vainshtein. Finding the structure of objects from projections. *Soviet Physics - Crystallography*, 15 (5):781–787, 1970. 54
- J. Verbeeck und S. Bals. TOM Toolbox adapted to a Jeol3000F. In *Proceedings of the 16th International Microscopy Conference Sapporo, Japan*, page 697. 2006. 85
- Marcel A. Verheijen, Rienk E. Algra, Magnus T. Borgstrom, George Immink, Erwan Sourty, Willem J. P. van Enkevort, Elias Vlieg, und Erik P. A. M. Bakkers. Three-Dimensional Morphology of GaP&x2212;GaAs Nanowires Revealed by Transmission Electron Microscopy Tomography. *Nano Letters*, 7(10):3051–3055, 2007. 144
- VSG Visualization Sciences Group, [www.vsg3d.com](http://www.vsg3d.com). AVIZO. 70
- R. S. Wagner und W. C. Ellis. Vapor-Liquid-Solid Mechanism of Single Crystal Growth. *Appl. Phys. Lett.*, 4(5):89–90, 1964. 141
- H. Wahl. *Bildebenenholographie mit Elektronen*. Habilitationsschrift, Universität Tübingen, 1975. 26
- Y.C. Wang, T.M. Chou, M. Libera, E. Voelkl, und B.G. Frost. Measurement of Polystyrene Mean Inner Potential by Transmission Electron Holography of Latex Spheres. *Microscopy and Microanalysis*, 4:146–157, 1998. 118, 133

- H. Weickenmeier, A. Kohl. Computation of absorptive form factors for high energy electron diffraction. *Acta Crystallographica Section A*, 47:590–597, 1991. 10
- Joachim Weickert, editor. In Joachim Weickert, editor, *Anisotropic Diffusion in Image Processing*. B. G. Teubner-Verlag, Stuttgart, Germany, 1998. 70
- Manfred Weiler, Thomas Klein, und Thomas Ertl. Direct volume rendering in OpenSG. *Computers & Graphics*, 28(1):93–98, 2004. 69
- G. Wentzel. Zwei Bemerkungen über die Zerstreuung korpuskularer Strahlen als Beugungserscheinung. *Zeitschrift für Physik*, 40:590–593, 1926. 10
- Matthew Weyland. *Two and Three Dimensional Nanoscale Analysis: New Techniques and Applications*. Dissertation, University of Cambridge, 2001. 52, 57, 63
- Matthew Weyland, Paul A. Midgley, und John Meurig Thomas. Electron Tomography of Nanoparticle Catalysts on Porous Supports: A New Technique Based on Rutherford Scattering. *The Journal of Physical Chemistry B*, 105(33): 7882–7886, 2001. 52, 53, 57
- B. David Williams und C. Barry Carter. *Transmission Electron Microscopy: A Textbook for Materials Science*. Plenum Press, New York, 1996. 9
- D. Wolf. *Analyse der im holographischen Seitenband und Zentralband gefundenen Objektinformation*. Diplomarbeit, Technische Universität Dresden, 2004. 33, 93
- D. Wolf, M. Lehmann, D. Geiger, und H. Lichte. Simulation of quantum noise and application in electron holography. In *Proceedings of EMC Antwerp*, page IM06.P01. 2004. 33
- Daniel Wolf. Towards Quantitative Electron-Holographic Tomography. In Thomas Gemming, Uwe Hartmann, Pedro Mestres, und Paul Walther, editors, *Microsc. Microanal. Vol 13 Suppl. 3, Proceedings MC2007 Saarbrücken*, pages 112–113. Cambridge University Press, 2007. 127
- Daniel Wolf, Petr Formanek, Hannes Lichte, und Ann Marie Hirt. Three-dimensional Reconstruction of Magnetic Fields by Electron-Holographic Tomography. In *Proc. 71st Annual Meeting and DPG-Spring Meeting of the Division Condensed Matter, Regensburg*, page 499. Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, 2007. 127, 155
- Daniel Wolf, Andreas Lenk, und Hannes Lichte. Three-dimensional potential mapping of nanostructures with electron-holographic tomography. In M. Luysberg, K. Tillmann, und T. Weirich, editors, *Proceedings EMC Aachen: Instrumentation and Methods*, volume 1, pages 339–340. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. 127

- Daniel Wolf, Axel Lubk, Hannes Lichte, und Heiner Friedrich. Towards automated electron holographic tomography for 3D mapping of electrostatic potentials. *Ultramicroscopy*, 110(5):390–399, 2010. 65
- Qingxiong S. Zheng, Michael B. Braunfeld, John W. Sedat, und David A. Agard. An improved strategy for automated electron microscopic tomography. *Journal of Structural Biology*, 147(2):91–101, 2004. 64, 76
- Shawn Q. Zheng, Bettina Keszthelyi, Eric Branlund, John M. Lyle, Michael B. Braunfeld, John W. Sedat, und David A. Agard. UCSF tomography: An integrated software suite for real-time electron microscopic tomographic data collection, alignment, and reconstruction. *Journal of Structural Biology*, 157(1):138–147, 2007. 65
- U. Ziese, A. H. Janssen, J.-L. Murk, W. J. C. Geerts, T. Van der Krift, A.J. Verkleij, und A.J. Koster. Automated high-throughput electron tomography by pre-calibration of image shifts. *Journal of Microscopy*, 205(2):187–200, 2002. 64, 76, 89

## Danksagung

Es liegt in der Natur der Sache, dass eine Dissertation mit physikalischem Inhalt wie diese, welche zudem noch im Passiv formuliert ist, zunächst eher leblos wirkt. Umso aktiver und lebendiger empfand ich dagegen die Diskussionen, die Zusammenarbeit und die Kooperationen mit passionierten Elektronenmikroskopikern aus nah und fern, welche maßgeblich die Inhalte dieser Arbeit beeinflussten. An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich während der letzten Jahre unterstützt und begleitet haben.

Beginnen möchte ich bei meinen (Ex-)Mitarbeitern und Freunden vom Triebenberg-Labor: Prof. Hannes Lichte danke ich recht herzlich für seine intensive Betreuung und seine permanente Unterstützung, sowie dafür, dass er mir anfangs mit viel Geduld die nötige Ruhe und Zeit gab, eigene Ideen von Grund auf neu zu entwickeln und in die Tat umzusetzen. Oft hat es mir die Arbeit enorm erleichtert, dass ich auf den Rat und die Hilfe von Axel Lubk, Martin Linck, Falk Röder, Dorin Geiger, Bernd Einenkel und Prof. Michael Lehmann (TU Berlin) zurückgreifen durfte, wofür ich ihnen hiermit herzlich danke. Karin Vogel, Prof. Kenji Tsuda (Tohoku University, Sendai), Petr Formanek (IPF Dresden) und Jan Sickmann bin für die stete Hilfsbereitschaft und das harmonische Miteinander im gemeinsamen Büro dankbar. Bei Andreas Lenk bedanke ich mich insbesondere für die Präparation der Halbleiter-Nadeln. Außerdem gilt mein Dank Marianne Reibold, Heide Müller, Ilona Pietzsch, John Sandino und Cornelia Juncker für die gute Zusammenarbeit.

Heiner Friedrich (Universität Eindhoven) danke ich für seine Hilfe bei meinen ersten Schritten in der Tomographie und bei meinem ersten Paper. Außerdem war seine wesentliche Mitwirkung beim erfolgreichen Antrag des DFG-Projektes zur Holographischen Tomographie der Schlüssel dafür, dass diese Dissertation dieses Thema erhielt.

Jo Verbeeck (Universität Antwerpen) danke ich für seine überaus hilfreichen Tipps und die erfolgreiche Zusammenarbeit bei der Adaption der THOMAS-Software an ein JEOL 3000F. Weiterhin möchte ich hier Tore Niermann (TU Berlin) meinen Dank für seine Hilfe bei der parallelisierten Programmierung in VC++ aussprechen.

Bei Clemens Wündisch (Forschungszentrum Dresden-Rossendorf) bedanke ich mich für die Bereitstellung der dotierten Germanium-Probe. Prof. Nico Lovergine (Universität Salento, Lecce) und Prof. Giulio Pozzi (Universität Bologna) sei herzlich für die interessanten Proben GaAs und AlGaAs Proben und die auch zukünftige intensive Kooperation gedankt.

Peter Denes, Ulrich Dahmen und Mitarbeitern danke ich für die Einladung an das NCEM in Berkeley und die erfolgreiche Kooperation.

Prof. Michael Radermacher gilt mein besonderer Dank für die unkomplizierte Übernahme des Zweitgutachtens.

Bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) und dem Freistaat Sachsen bedanke ich mich für die finanzielle Unterstützung.

Last but not least danke ich von Herzen meiner Frau Claudia sowie meinen Töchtern Judith und Ruth! Sie schenken mir während dieser Zeit Liebe, Freude, Motivation, Rückhalt und heilsame Atempausen.





Die Dissertation wurde im Speziallabor für höchstauflösende Elektronenmikroskopie und -holographie Triebenberg, des Instituts für Strukturphysik der TU Dresden angefertigt. Die wissenschaftliche Betreuung der Dissertation unterlag Prof. Dr. rer. nat. habil. Hannes Lichte, Inhaber des Lehrstuhls für physikalische Messtechnik an der TU Dresden. Dies ist mein erstes Promotionsverfahren.

## **Erklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Dresden, der \_\_\_\_\_  
Daniel Wolf

## **Anerkennung der Promotionsordnung**

Hiermit erkläre ich, dass ich die Promotionsordnung der Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Dresden in der Fassung vom 20. März 2000 vollständig anerkenne.

Dresden, der \_\_\_\_\_  
Daniel Wolf